

République Algérienne Démocratique et Populaire

MINISTRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA
RECHERCHE SCIENTIFIQUE
UNIVERSITE MENTOURI DE CONSTANTINE
Faculté des sciences de l'ingénieur

Département d'Electronique

N° d'ordre :.....

Série :.....

Mémoire

Présenté pour obtenir le diplôme de Magister
En Electronique

Option

Systemes micro-électronique et micro-onde

Par

Mr : MOUATSI Abdelmalek

THÈME

ÉTUDE DE L'EFFET DE L'HUMIDITÉ
SUR LES PROPRIÉTÉS ÉLECTRIQUE
DE LA SURFACE D'UN POLYMÈRE

Soutenu le : / /

Devant le jury composé de:

<u>Président:</u>	S. SAHLI	Prof. à l'Université de Constantine
<u>Rapporteur:</u>	A. BELLEL	M.C. à l'Université de Constantine
<u>Examineurs:</u>	S. REBIAI	M.C. à l'Université de Constantine
	R. MAHAMDI	M.C. à l'Université de Batna

Remerciements

*Avec beaucoup de bonheur que je saisis cet évènement pour remercier vivement mon encadreur **M^r A. BELLEL**, maître de conférence au département d'Électronique, de l'Université de Constantine, qui, à aucun moment, n'a cessé de me soutenir et lui exprime ma profonde gratitude pour sa disponibilité et les efforts qu'il a déployé pour me permettre de mener à bien ce modeste travail, en espérant d'être à la hauteur.*

Je tiens également à remercier toutes les personnes qui m'ont fait l'honneur d'accepter de participer à mon jury de soutenance :

***M^r S. SAHLI** professeur au département d'Électronique, de l'université de Constantine, pour l'honneur qu'il me fait en acceptant la présidence du Jury. Il m'est aussi autant agréable de lui présenter mon profond respect et lui exprimer toute ma reconnaissance pour son aide et ses conseils bénéfiques.*

***M^{me} A. REBIAI** maître de conférence au département d'Électronique, de l'Université de Constantine, pour l'intérêt qu'elle a témoigné à ce travail en acceptant de faire partie de ce Jury.*

***M^r R. MAHAMDI** maître de conférence au département d'Électronique, de l'Université Hadj Lakhdar , Batna, pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail en acceptant de participer à ce jury.*

*Je réitère mes vifs remerciements à **M^r A. KAHLOUCHE** maître assistante au département de technologie, de l'Université de M'ssila, qui n'a pas manqué de m'apporter leur aide tant appréciable et bénéfique.*

Je ne pourrais terminer sans avoir à remercier particulièrement mes collègues du Laboratoire ainsi tous ceux ou celles qui m'ont apporté tout soutien.

SOMMAIRE

SOMMAIRE

INTRODUCTION GÉNÉRALE.....	1
----------------------------	---

CHAPITRE I

GÉNÉRALITES SUR LES POLYMÈRES ET DÉCHARGE COURONNE

I.1.INTRODUCTION.....	3
I.2. DÉFINITION DU POLYMÈRE.....	4
I.2.1. Les thermoplastiques.....	5
I.2.2. Les thermodurcissables.....	5
I.2.3. Différents types de polymères.....	6
<i>a) Les homopolymères :</i>	6
<i>b) Les copolymères :</i>	7
I.2.4. Avantages et l'inconvénient des polymères.....	9
<i>a)Avantage:</i>	9
<i>b) L'inconvénient</i>	9
I.3.L'HUMIDITÉ RELATIVE.....	9
I.3.1.Définition.....	9
I.3.2.Nature dipolaire de l'eau.....	11
I.4. NOTION D'ÉLECTRSTATIQUE.....	12
I.4.1. Phénomène de charge.....	12
I.4.2. La décharge électrostatique.....	13
I.5. LA DÉCHARGE COURONNE.....	13
I.5.1. Mécanisme de décharge couronne.....	13
I.5.2. Cas d'une pointe positive.....	15
I.5.3. Cas d'une pointe négative.....	16
I.5.4. Les ions générés par décharge corona.....	17
I.6. APPLICATION DE DÉCHARGE COURONNE.....	18
I.7.PHENOMENE DE CONDUCTION DE CHARGE DANS LES POLYMÈRES.....	18
I.7.1. Polarisation sous champ statique.....	18

I-7-2-Transport par sauts (hopping).....	19
I.8. CONCLUSION.....	20
Référence de Chapitre I.....	21

CHAPITRE II : DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX

II.1.INTRODUCTION.....	24
II.2. MATÉRIAUX ÉTUDIÉ.....	24
II.2.1. Généralités.....	24
II.2.2 Substrat.....	25
II.2.3 Caractéristiques de films de polyimide.....	26
II.2.4 Application du polyimide dans l'industrie.....	27
II.3. LA CHAMBRE CLIMATIQUE.....	28
II.4. DISPOSITIF DE CHARGEMENT PAR EFFET COURONNE.....	29
II.5. DISPOSITIF DE MÉSURE DU POTENTIEL DE SURFACE.....	30
II.6.DISPOSITIF DE RÉGLAGE DU TAUX D'HUMIDITÉ RELATIVE.....	31
II.6.1. Caractéristiques de l'hygromètre TESTO 610.....	33
II.7. CONCLUSION.....	33
Référence de chapitre II.....	34

CHAPITRE III : ÉTUDE DE L'EFFET DE L'HUMIDITÉ RELATIVE SUR LA DÉCHARGE ÉLÉCTROSTATIQUE

III.1. INTRODUCTION.....	35
III.2. ÉTUDE LA DÉCHARGE ÉLÉCTROSTATIQUE DANS UN ENVIRONNEMENT RELATIVEMENT SEC RH=30%).....	36
III.2.1. Etude du potentiel de surface $V_s(t)$	36
III.2.2 Evolution spatiale du potentiel de surface $V_s(x,y)$ (profile)	38
III.3.EFFET DE L'HUMIDITÉ RELATIVE SUR LA DÉCHARGE LÉCTROSTATIQUE DANS UN FILM (PI).....	39

III.3.1 Mesure du déclin de potentiel de surface en fonction du temps pour différent RH.....	40
III.3.2 Effet de HR sur le profile de potentiel de surface.....	43
III.4. CONCLUSION.....	45
Référence Chapitre III.....	46

CHAPITRE IV :
MODÉLISATION DE LA DÉCHARGE ÉLÉCTROSTATIQUE DANS
UN FILM DE POLYIMIDE

IV.1. INTRODUCTION.....	48
IV.2. MODÈLE THÉORIQUE UTILISÉ.....	49
IV.2.1. Méthode de discrétisation.....	52
IV.3. MODÉLISATION DU DÉCLIN DE POTENTIEL MESURÉ DANS UN ENVIRONNEMENT RELATIVEMENT SEC.....	54
IV.3.1. Effet du niveau de chargement sur la mobilité des porteurs.....	56
IV.3.2. Effet du champ sur la proportion de charges injectées dans le volum.....	58
IV.3.3. Effet de champs sur les paramètres caractérisant les phénomènes de piégeage et dépiégeage.....	59
IV.4. ÉTUDE DE L'EFFET DE L'HUMIDITÉ RELATIVE (RH) SUR LA DÉCHARGE ÉLÉCTROSTATIQUE DANS UN FILM DE PLYIMIDE (PI).....	60
IV.4.1. Modélisation du déclin de potentiel de surface pour différent RH.....	61
IV.4.2. Effet de RH sur la mobilité des charges.....	63
IV.4.3 Effet de l'humidité relative RH sur la proportion des charges injectée (α).....	65
IV4.4. Effet de l'humidité relative RH sur le temps de piégeage et dépiégeage.....	67
IV.5. CONCLUSION.....	68
Référence de Chapitre IV.....	69
CONCLUSION GENERALE.....	72

INTRODUCTION GÉNÉRALE

INTRODUCTION GÉNÉRALE

Depuis plusieurs années, les applications des isolants solides, notamment les polymères ont connus un élargissement dans le domaine industriel à cause de leurs excellentes propriétés électriques, thermiques et mécaniques. Le film de polyimide possède un ensemble unique de propriétés qui le recommandent pour un grand nombre d'applications dans de nombreux domaines industriels. L'aptitude du Kapton à conserver ses excellentes caractéristiques physiques, électriques et mécaniques dans une plage de température tendue ouvre aux films de nouvelles possibilités de conception et d'application. Le polyimide (PI) est connu pour sa stabilité thermique élevée, excellente résistance chimique, constant diélectrique bas, résistivité électrique élevée et dureté mécanique élevée due aux unités aromatiques d'anneau d'imide. Pour toutes ces raisons, les films de polyimide ont été de plus en plus employés dans diverses applications principalement dans l'industrie de la microélectronique comme diélectrique pour circuit multicouche et de passivation remplaçant ainsi les isolateurs inorganiques traditionnels tels que le SiO_2 . En outre pendant la dernière décennie, ces polymères ont été employés dans beaucoup d'applications et dans une grande variété de champs tels que l'aérospatiale et l'automobile. Cependant, la teneur en eau du film polyimide due à la présence de la vapeur d'eau peut influencer sur les propriétés électriques de ce matériau. Donc, l'étude de la décharge électrostatique dans un environnement humide est nécessaire et peut être considérée comme une source de renseignement sur les paramètres électrique contrôlant la cinétique de décroissance du potentiel de surface.

Le but de ce travail est de faire une étude complète sur l'effet de la présence de la vapeur d'eau sur la décharge électrostatique dans un film de polyimide préalablement chargé par effet corona. L'étude consiste à suivre l'évolution du déclin de potentiel de surface avec l'augmentation du taux d'humidité relative puis faire une modélisation théorique du déclin de potentiel afin de mettre en évidence l'influence de l'humidité relative sur les paramètres contrôlant les mécanismes de conduction dans les films de polyimide.

Le mémoire a été structuré en quatre chapitres, chacun avec sa propre bibliographie en plus d'une conclusion générale.

➤ Dans le premier chapitre, on donnera en premier lieu une définition générale sur les polymères, quelques notions sur l'humidité relative et des rappels sur les propriétés de la décharge couronne comme technique de chargement électrostatique.

➤ Le deuxième chapitre a été consacré à la présentation des caractéristiques physico-chimique des films de polyimide ainsi que leurs propriétés électriques. Dans ce chapitre on présente également la description de la chambre climatique utilisée pour le chargement de la surface par effet couronne et la mesure du potentiel de surface avec la sonde vibrante.

➤ Dans le troisième chapitre, on présente les résultats expérimentaux concernant le déclin du potentiel de surface enregistré sur des films de polyimide pour différente tension de grille et différent taux d'humidité relative. Ces résultats ont été obtenus grâce à la collaboration avec M^r: A.KAHLOUCHE dans le cadre de son travail de son travail de préparation de doctorat.

➤ Le quatrième chapitre est consacré à la présentation des résultats relatifs à la modélisation de l'évolution du déclin de potentiel en fonction du temps pour différent taux d'humidité relative. Dans ce chapitre, les données issues de la procédure de simulation concernant les paramètres contrôlant la cinétique du déclin de potentiel seront également présentées.

On termine le mémoire par une conclusion générale et quelques perspectives.

CHAPITRE I

***GÉNÉRALITES SUR LES
POLYMÈRES ET LA DÉCHARGE
COURONNE***

GÉNÉRALITES SUR LES POLYMÈRES ET LA DÉCHARGE COURONNE

I.1. INTRODUCTION

Grâce à leur performance physico-chimique, les matériaux diélectriques à base de polymères trouvent un champ d'application de plus en plus dans l'industrie et notamment dans le domaine du génie électrique : câble de transport d'énergie, condensateurs... etc [01].

L'utilisation des polymères dans la microélectronique est plus récente (fin des années 70) avec la réalisation des premiers systèmes microfluidiques. Les polymères ont également été utilisés comme couches sensibles en utilisant directement certaines de leurs propriétés chimiques ou indirectement comme supports matriciels pour des agents actifs. Les polymères apparaissent comme des biomatériaux très prometteurs. En effet, leur utilisation est de plus en plus courante dans des domaines tels que la médecine où ils sont utilisés dans certains procédés chirurgicaux notamment oculaires, comme implants artificiels, prothèses ou bien dans les systèmes de distribution automatique de médicaments .

Dans le domaine des micro-technologies, les polymères sont utilisés depuis très longtemps comme encapsulant avec des propriétés tels que la conduction thermique, la protection électromagnétique ou encore la protection contre l'UV [02].

Dans ce chapitre, on donnera en premier lieu une introduction générale de la structure des polymères. Ensuite, on présentera quelques notions sur l'humidité relative, puis, un rappel sur les propriétés de la décharge couronne comme technique de chargement électrostatique des isolants et des polymères. Finalement, une généralité sur les phénomènes de conduction dans les polymères sera présentée en fin de chapitre.

I.2. DÉFINITION D'UN POLYMÈRE

Un polymère est une macromolécule formée de l'enchaînement covalent d'un très grand nombre d'unités de répétition qui dérivent d'un ou de plusieurs monomères (qui sont également appelées motifs) et préparée à partir de molécules appelées monomère [03].

Le nombre moyen de ces unités de base (monomères) dans les molécules finales (polymères) représente le degré de polymérisation. Si ce degré est élevé, on parle de hauts polymères par contre s'il est faible, le composé est une oligomère [04]. Le nom des polymères est généralement dérivé de celui du monomère en ajoutant le préfixe poly Exemple : polyéthylène, poly(acide glycolique), polytétrafluoroéthylène, polyimideetc [05]. Une macromolécule est caractérisée par sa masse molaire M qui est en rapport avec le degré de polymérisation x représentant le nombre d'unités de la répétition dans la macromolécule par la relation simple [06]

$$M = x \cdot M_0 \quad (I-1)$$

où M_0 est la masse molaire de l'unité de la répétition [06].

On modifie les propriétés des polymères en leur mélangeant des charges minérales thermiquement stables et pratiquement insensibles à la température. On cherche par exemple à augmenter le module de rigidité et, pour les semi-cristallins, à retarder aussi la chute du module en approchant la zone de fusion. L'étirage macroscopique rapide d'un polymère fondu entraîne une orientation partielle des chaînes individuelles qui, bien qu'encore enchevêtrées, présentent une anisotropie macroscopique de leurs propriétés [07].

D'une façon générale, un polymère est un mélange de macromolécules de différentes tailles et de compositions variées si l'on a différents monomères. Ainsi, on peut caractériser un polymère par [04] :

- sa composition chimique moyenne
- sa masse moléculaire moyenne
- son degré de polymérisation

sa structure (amorphe ou semi-cristallin).

Les polymères peuvent être divisés en polymères thermoplastiques, polymères thermodurcissables ou polymère élastomères.

I.2.1. Les thermoplastiques

Les thermoplastiques sont des polymères qui se déforment et sont façonnables sous l'action de la chaleur. Cette propriété permet leur recyclage [08,02]. On trouve aujourd'hui de nombreux types de thermoplastiques offrant une vaste gamme de propriétés intéressantes. On peut les rendre aussi souples que le caoutchouc, aussi rigides que le métal et le béton, ou aussi transparents que le verre, pour un usage dans de nombreux produits de tuyauterie et autres composants. Certains d'entre eux peuvent supporter des températures atteignant 315 °C. D'autres conservent leurs propriétés jusqu'à -73 °C. Ils ne s'oxydent pas, ont une haute résistance à la corrosion et sont d'excellents isolants thermiques et électriques. De par leur légèreté, leur haute résistance mécanique et leur résistance aux effets de l'environnement, les thermoplastiques constituent un matériau idéal pour les installations de tuyauteries industrielles, commerciales et d'habitations [09].

I.2.2. Les thermodurcissables

Les polymères thermodurcissables prennent leur forme définitive au premier refroidissement, la réversibilité est impossible [08].

Le tableau suivant donne les principaux polymères solides utilisés dans l'industrie électrique [04,08].

Polymères thermoplastiques	Polymères thermodurcissables
<ul style="list-style-type: none"> • Polyamides • Polycarbonates • Polychlorure de vinyle • Polychlorure de vinylidène • Polyéthylène (basse, moyenne, et haute densité) • Polyéthylène téréphtalate • Polyfluorure de vinylidène • Polyméthacrylate de méthyle • Polypropylène • Polystyrène • Polytétrafluoroéthylène 	<p>Aminoplastes:</p> <ul style="list-style-type: none"> • Mélamine formaldéhyde • Urée formaldéhyde • Epoxyde • Phénoplaste • Phtalate de diallyle • Polyester • Polyimide • Polyuréthane • Silicone

Tableau.1.1: Principaux polymères solides utilisés dans l'industrie électrique [04].

I.2.3. Différents types de polymères

Il existe deux types de polymères [03] :

- i. Les homopolymères
- ii. Les copolymères

a) Les homopolymères

Les homopolymères sont des polymères qui ne possèdent qu'une seule unité (monomères) [05,09]. Si seulement un type de monomère est utilisé, le polymère résultant est appelé un homopolymère [06]. Il existe, au sein des homopolymères, différentes familles.

Soit **R** le monomère, on peut présenter l'homopolymère comme suit :

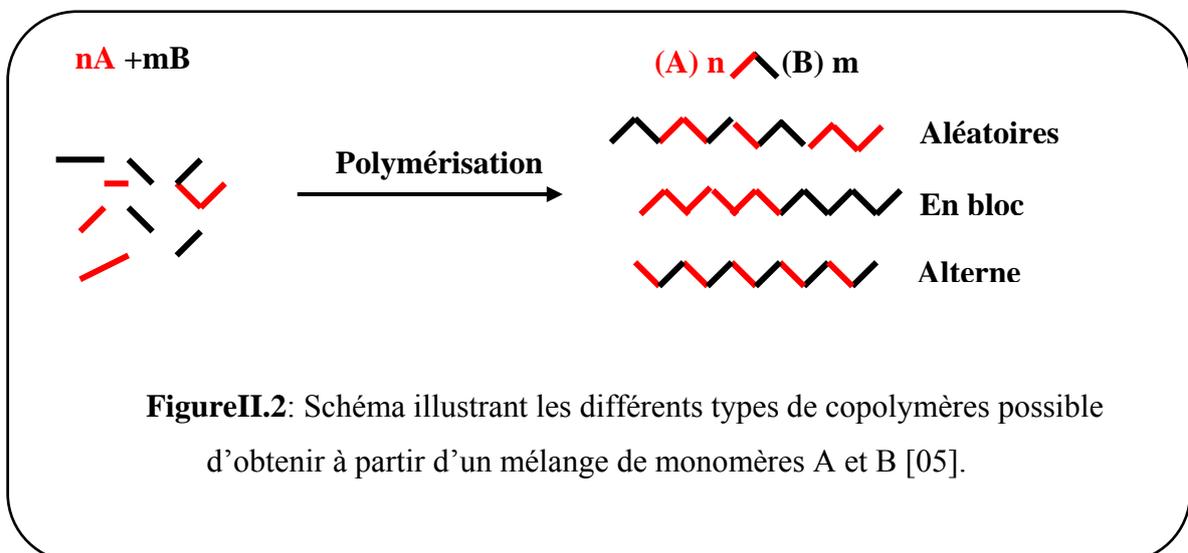


Figure I.1: Structure d'un polymère linéaire [05].

b) Les copolymères

Les copolymères sont des polymères qui possèdent plusieurs unités. Comme pour les homopolymères, les copolymères peuvent se classer dans différentes familles [03].

Selon la manière dont les motifs unitaires A et B s'enchaînent, on distingue les copolymères aléatoires, à blocs et alternés [05, 09,02]. Si deux types de monomères A et B sont utilisés, nous pouvons classer le copolymères comme suit :



- ◆ Les copolymères statistiques sont des copolymères dans lesquels la distribution séquentielle des unités de la répétition obéit à des lois statistiques connues. Les copolymères aléatoires sont des copolymères statistiques dans lesquels la distribution est vraiment aléatoire [06].

- ◆ Les copolymères alternants sont arrangés dans un chemin strictement alternant le long de la chaîne du polymère. Les copolymères du bloc sont des copolymères linéaires dans lesquels les unités de la répétition existent seulement dans des longues séquences, ou blocs, du même type [06].
- ◆ Les copolymères de la greffe sont des types de polymères dans lesquels les branches ont une structure chimique différente de celle de la chaîne principale [06].

Parmi ces différents types de polymères, on peut trouver des polymères polaires et d'autres non polaires.

Les polymères polaires

Les polymères polaires sont généralement des matériaux isolants possèdent dans leurs molécules en plus du carbone et de l'hydrogène, des atomes généralement électronégatifs tels que : le fluor, le chlore, l'oxygène, l'azote, qui fournissent des dipôles. Ces matériaux possèdent au contraire des polymères apolaires, une permittivité relative et un indice des pertes diélectriques élevées. Parmi ces polymères on peut citer [04] :

- le poly(chlorure de vinyle) PVC;
- le poly(fluorure de vinylidène) PVDF;
- le poly(méthacrylate de méthyle) PMMA;
- les polycondensats tels que : les polyamides, les polystères.

Les polymères apolaires

Contrairement aux polymères polaires, ces polymères présentent un indice de pertes diélectriques faibles et une permittivité relative quasi-constante dans un large domaine de température et de fréquence. Leur formule chimique ne contient que du carbone et de l'hydrogène et s'ils contiennent des atomes électronégatifs tels que le fluor, ces atomes sont placés symétriquement le long de la chaîne carbonée. Parmi ces polymères on peut citer [04] :

- le polyéthylène PE ;
- le polypropylène PP ;
- le poly (tétrafluoréthylène) PTFE.

I.2.4. Avantages et l'inconvénient des polymères

a) Avantage

L'avantage des polymères par rapport aux autres matériaux comme les métaux ou les céramiques, est de pouvoir modifier leur composition pour obtenir une plus grande variété de structures et de propriétés. S'il existe des polymères d'origine naturelle tels que la soie ou la cellulose, les polymères d'origine synthétique sont d'une manière générale plus intéressants de par la malléabilité de leur composition [02].

b) L'inconvénient

Reste le manque de biocompatibilité de la majorité de ces matériaux qui sont la cause de réactions inflammatoires lors de la mise en contact avec un milieu vivant. Malgré cela, certains de ces matériaux sont déjà très utilisés dans le milieu médical. La liste des applications présentée est loin d'être exhaustive, mais elle donne une vision globale du rôle des polymères dans la médecine actuelle [02].

I.3. L'HUMIDITÉ RELATIVE

I.3.1. Définition

L'humidité exprime la présence d'un mélange d'air sec et de vapeur d'eau dans l'air ambiant. En général, lorsque on parle de mesure d'humidité, on fait allusion au taux d'humidité exprimé en (%) qui est en fait l'humidité relative. La détermination de cette mesure est complexe, car elle est étroitement liée à d'autres grandeurs physiques telles que la température et la pression [01].

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

$$m = m_a + m_v \tag{I-2}$$

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

$$p = p_a + p_v \quad (\text{I-3})$$

Le rapport de mélange r , c'est le rapport de la masse m_v de vapeur d'eau à la masse m_a d'air sec à laquelle cette vapeur d'eau est mélangée.

La grandeur de référence en humidité est :

$$r = \left(\frac{m_v}{m_a} \right) \quad (\text{I-4})$$

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

L'humidité relative U (%), c'est le rapport de la pression partielle de vapeur d'eau à la pression de vapeur saturante à la température T .

$$U = \left(\frac{p_v}{p_s(T)} \right) \cdot 100 \quad (\text{I-5})$$

$$p_v = p_s(T_d) \quad (\text{I-6})$$

Où T_d c'est la température de rosée, à laquelle il faut refroidir l'air humide pour atteindre la saturation. Le rapport de mélange r restant constant pendant le refroidissement [10].

Ces définitions concernent l'air humide. Pour d'autre gaz, les définitions précédentes restent valables en utilisant les masses molaires et les concentrations des différents éléments composant le mélange.

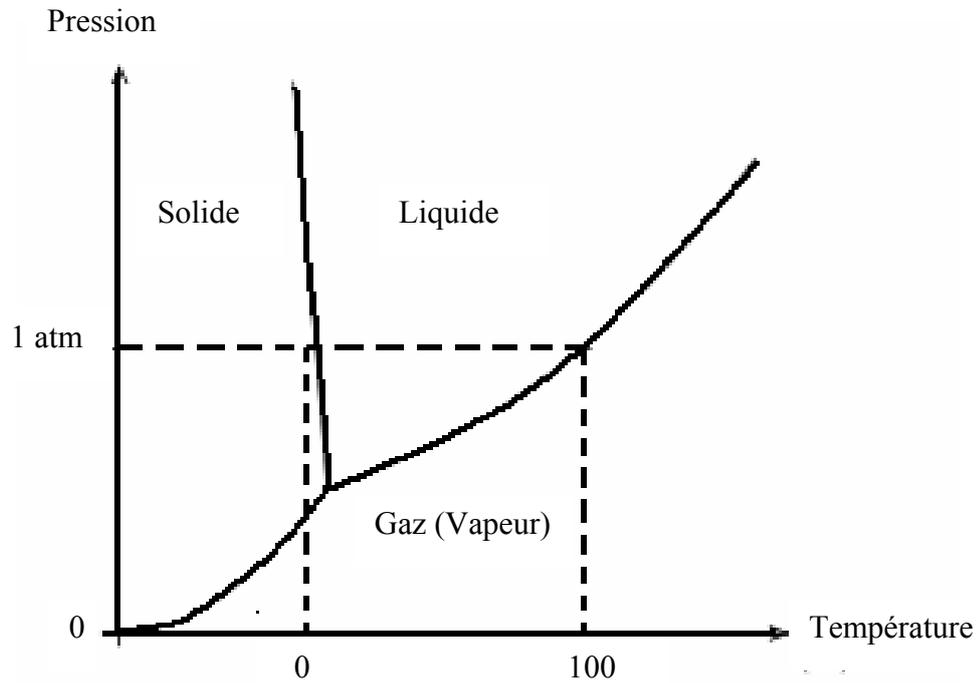
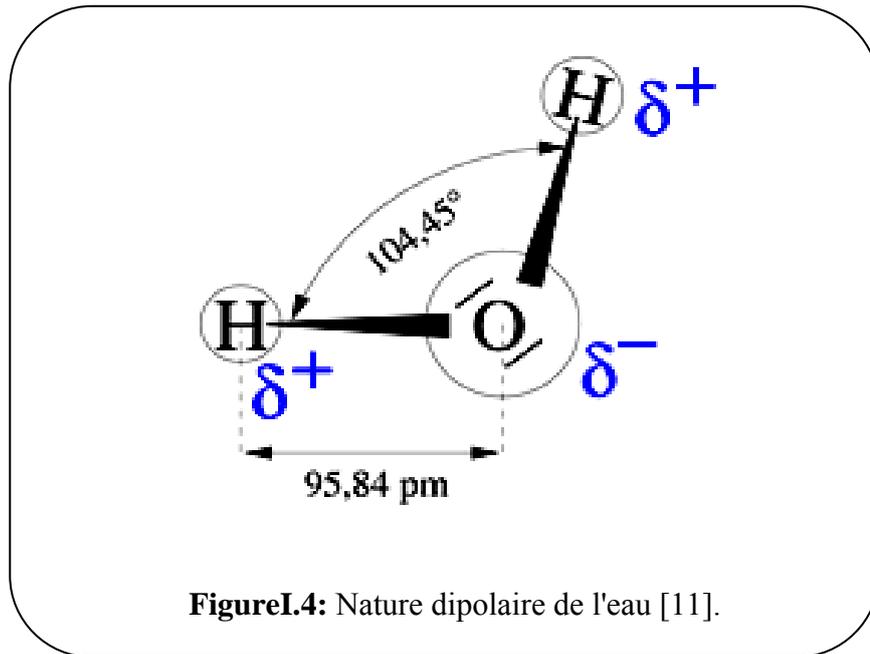


Figure I.3 : Diagramme de phase de l'eau, montrant l'état de l'eau pure en fonction de la température et de la pression. [11].

I.3.2. Nature dipolaire de l'eau

Une propriété très importante de l'eau est sa nature polaire. La molécule d'eau forme un angle de $104,45^\circ$ au niveau de l'atome d'oxygène et entre les deux atomes d'hydrogène. Puisque l'oxygène a une électronégativité plus forte que l'hydrogène, le côté de la molécule d'eau où se trouve l'atome d'oxygène est chargé négativement, par comparaison avec le côté hydrogène. Une molécule avec une telle différence de charge est appelée un dipôle (molécule polaire) [11].



Le courant électrique, quelle que soit son origine, dissocie les molécules d'eau en ions H^+ (cations) et OH^- (anions) dont la mobilité est grande en comparaison avec des autres ions [04].

Par perte d'un proton H^+ , elle devient OH^- . Par gain d'un proton H^+ , elle devient l'ion hydronium H_3O^+ . Les ions hydroniums et hydroxyde sont très réactifs, ils peuvent attaquer d'autres matériaux, les dissoudre [11].

I.4. NOTION D'ÉLECTROSTATIQUE

I.4.1. Phénomène de charge

Un corps chargé électriquement est la manifestation d'une accumulation ou d'une perte de charges électriques. En effet, lorsqu'un corps est en équilibre, il est électriquement neutre. Ce corps sera électrisé lorsque des atomes auront soit gagné, soit perdu un ou plusieurs électrons rompant ainsi l'équilibre et la neutralité. On dit alors que ce corps possède une charge électrique.

Il y a de nombreux modes d'électrisation possibles [12] :

- 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. L'effet couronne correspond au phénomène d'ionisation de l'air proche d'un corps dont le potentiel électrique est très élevé. En effet, un corps dont le potentiel électrique est suffisamment élevé va permettre d'atteindre le potentiel seuil au-delà duquel l'air à proximité va devenir conducteur : c'est le potentiel disruptif de l'air. Le corps chargé provoque un champ électrique très intense dans son voisinage proche, de sorte qu'il se crée un plasma conducteur par ionisation de l'air. Cet effet couronne est aujourd'hui exploité pour charger des matériaux isolants dans le but d'étudier l'évolution de cette charge. Cette méthode est pratique car elle permet de déposer de manière contrôlée une quantité de charge connue (sous forme d'ions) à la surface d'un corps [12].

I.4.2. La décharge électrostatique

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 peut se produire de différentes manières :

- Dans de l'air (humidité)
- L'ionisation de l'air (effet couronne)
- L'arc (ou contact par effluve)
- L'utilisation de matières solides ou liquides conductrices
- La mise à la masse...

Le fait d'utiliser des matières métalliques ou de mettre les équipements en contact avec la terre favorise l'écoulement de ces charges de manière contrôlée. Par contre, les mécanismes de décharges qui peuvent poser problème ne sont pas contrôlés, ils sont majoritairement la conséquence du champ

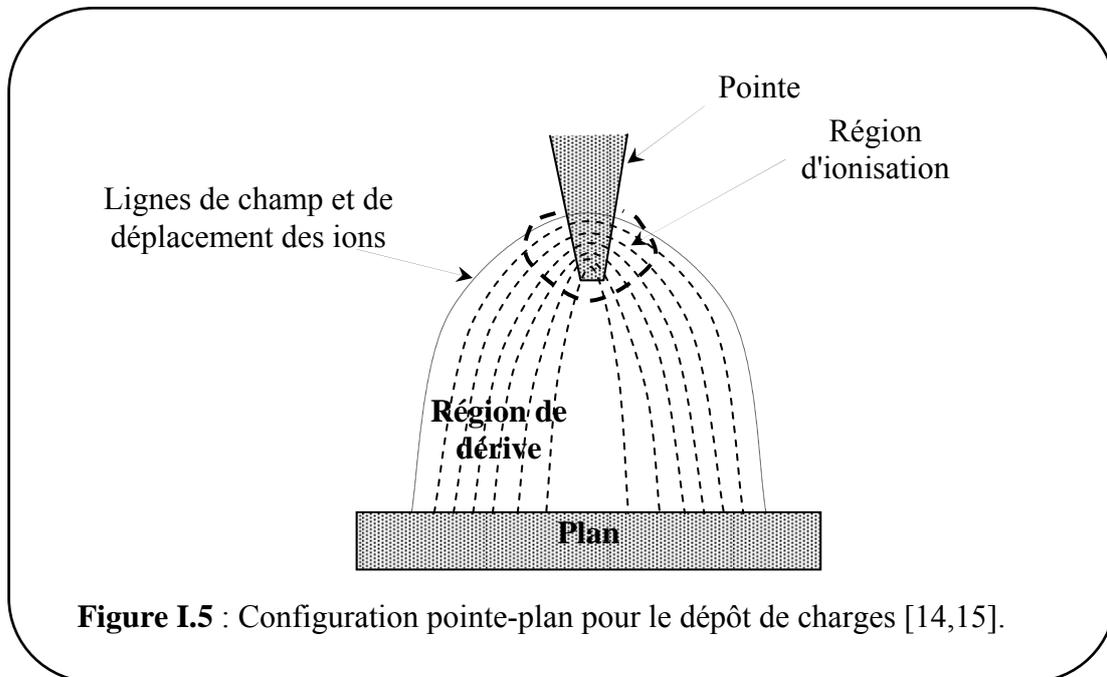
électrique intense dans le milieu environnant. En effet, de telles décharges apparaissent lorsqu'une distribution de charge superficielle ou volumique engendre un champ électrique supérieur à la rigidité diélectrique du milieu [12].

Il existe plusieurs phénomènes de la décharge électrostatique. Nous nous intéressons dans ce travail à la décharge par effet corona.

I.5. LA DÉCHARGE COURONNE

I.5.1. Mécanisme de décharge couronne

La décharge couronne représente l'ensemble des phénomènes liés à l'apparition d'une conductivité dans un gaz au voisinage d'un conducteur de faible rayon de courbure, les électrodes étant soumises à une différence de potentiel élevée [13]. La décharge est classiquement établie entre une électrode active et une électrode passive (électrode reliée à la terre). L'électrode active est une pointe (ou un fil de petit diamètre) à laquelle on va appliquer un haut potentiel électrique tandis que l'électrode passive est une plaque ou une grille (Figure I-5). On obtient alors une décharge couronne volumique.



La dissymétrie des électrodes conduit à un champ électrique inhomogène dans l'espace inter-électrodes. En l'absence de charge d'espace, Hartmann [16] a établi une expression du champ électrique $E(x)$ en fonction du potentiel appliqué à la pointe le long de l'axe de symétrie x :

$$E(x) = \frac{V}{(x + r/2) \ln \left[\frac{2d + r}{r} \right]} \quad (\text{I-7})$$

Avec V le potentiel, d la distance inter-électrodes, r le rayon de courbure de la pointe et x l'abscisse du point considéré par rapport à l'extrémité de la pointe prise comme origine.

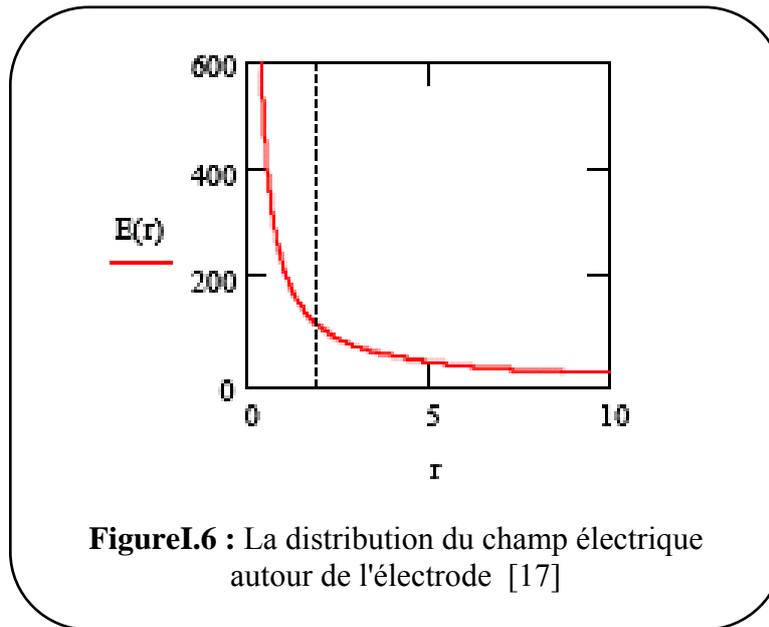
Dans une configuration fil-plaque, Lacoste et al [16] ont réduit l'expression du champ électrique $E(x)$ à :

$$E(x) = E_i \cdot \frac{r}{x} \quad (\text{I-8})$$

Avec E_i le champ électrique à la surface du fil que l'on peut déterminer par la formule empirique de Peek (157 kV/cm)

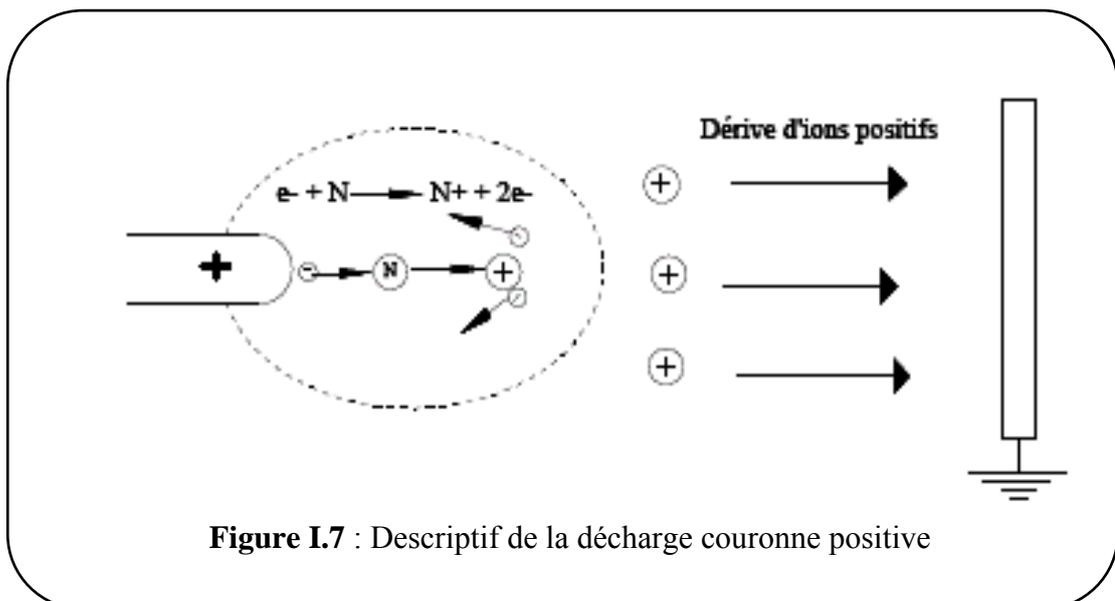
Comme une autre décharge électrique dans les gaz, la décharge de la couronne est basée sur l'ionisation de molécules des gaz et sur l'extrait d'électrons de métal de la cathode. Dû à la forme tranchante de l'électrode, le champ électrique est localisé fortement autour de l'électrode (Figure I.6). Avec un rayon court de courbure, tout processus d'excitation et d'ionisation pour les molécules des gaz est fait dans une zone mince autour de l'électrode [17].

Si l'électrode active est l'anode, les ions positifs sont repoussés et traversent l'espace entre les deux électrodes. Pour une électrode active cathode, comme les électrons s'attachent très rapidement aux atomes ou molécules neutres, des ions négatifs sont formés et tout se passe comme si des ions de même polarité que l'émetteur étaient émis sous l'effet de l'ionisation [13].



I.5.2. Cas d'une pointe positive

La décharge couronne positive est celle qui se produit quand la pointe est portée à un potentiel positif et la plaque à la terre. Dans ce cas, dans la zone de champ intense autour de la pointe, des électrons sont produits par photo-ionisation et sont accélérés vers l'anode (la pointe). Autour de celle-ci, se développe alors une région de forte ionisation : zone en pointillé sur la Figure I.7 [16].



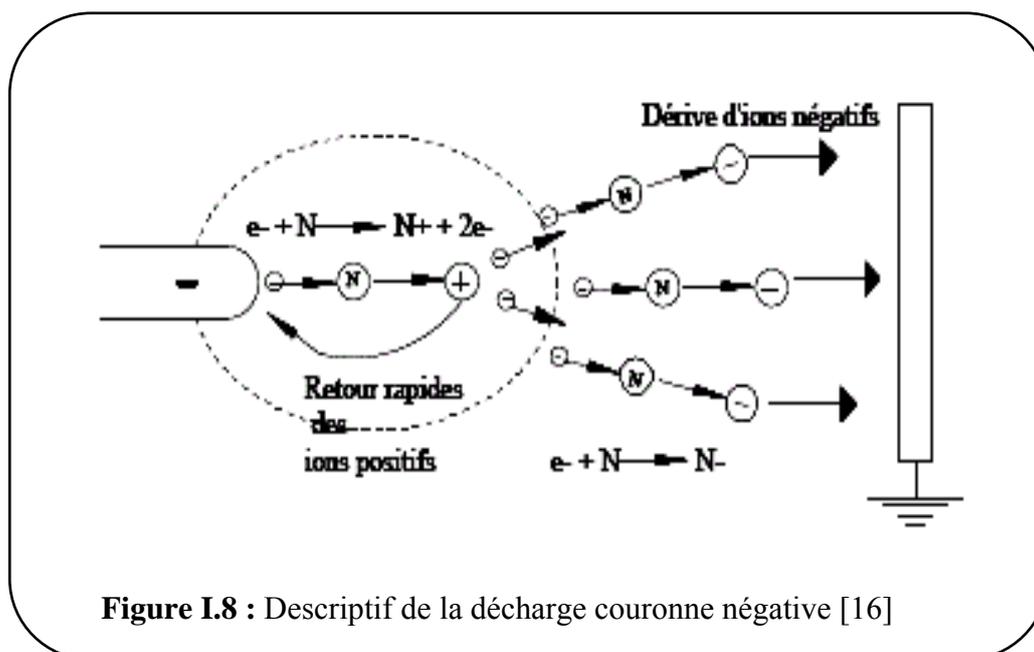
Le phénomène est plus complexe dans ce cas parce que la zone du champ électrique intense n'est pas juxtaposée à la source des électrons. Les électrons qui sont au voisinage de la pointe produisent des avalanches, mais quand les électrons arrivent sur la pointe, ils ne produisent rien qui puisse entretenir le phénomène. La cathode ne joue pas le rôle de pourvoyeuse des électrons car cette cathode est située très loin de la zone où le champ électrique est intense. Si le champ est assez fort, les électrons germes produits sous l'action du rayonnement ultraviolet émis par une avalanche créent des nouvelles avalanches. Le champ est renforcé par l'avalanche, mais la formation d'une chaîne entre électrodes est peu probable, le champ devenant trop faible au voisinage de la cathode [13].

I.5.3. Cas d'une pointe négative

Dans le cas où la pointe est portée à un potentiel négatif, il y a toujours création d'électrons par photo-ionisation et apparition de la zone d'ionisation autour de la pointe. Goldman et Sigmond (1982) expliquent que les ions positifs alors créés reviennent rapidement à la cathode (Figure I.8) [16].

Des électrons sont extraits de la cathode par choc, chaque électron ainsi libéré produit une nouvelle avalanche qui s'en dégage. Ces avalanches ont une extension limitée. D'une part, le champ décroît rapidement dès qu'on s'éloigne de la pointe vers le plan collecteur. D'autre part, les avalanches qui se développent laissent derrière elles les ions positifs moins mobiles qui font écran entre les électrons et la pointe. Cette deuxième cause d'affaiblissement du champ vient renforcer la première [13].

Un nuage d'ions positifs est formé par les avalanches d'électrons. Quand le nuage positif est développé de manière suffisante, les avalanches arrêtent de se produire parce que le champ est très affaibli au-delà. Les ions positifs sont attirés par la pointe, donc ils sont neutralisés par la pointe si bien que la zone positive dont nous avons vu la formation disparaît [16].



L'effet d'écran disparaît quand tous les ions positifs ont été captés par la pointe ; on a, à nouveau, le champ initial et le phénomène recommence. Il a donc une allure cyclique, la durée du cycle étant égale au temps mis par la couche positive pour être balayée par la pointe [13,18].

I.5.4. Les ions générés par décharge corona

Les types d'ion générés dans des décharges couronne positives et négatives ont été déterminés par plusieurs auteurs utilisant des techniques de spectroscopie de masse. Leurs études ont montré que les types d'espèce générées par la décharge couronne dépendent fortement sur le type de gaz présent au voisinage de la pointe. Dans l'air, les espèces dominantes pour une décharge couronne positive sont des ions hydratées avec la formule générale $(\text{H}_2\text{O})_n\text{H}^+$ où n est un nombre entier qui augmente avec humidité relative. Les différents types d'ions générés par la décharge couronne sont (positifs): CO^+ , C^+ , C_2O^+ , C_3O^+ , GO^{+2} , H_3O^+ , CHO^+ , CHO^+ et (négatifs): O^- , O_2^- , O_3^- , CO_3^- , CO^- , OH^- [19].

I.6. APPLICATION DE LA DÉCHARGE COURONNE

Les décharges corona ont de nombreuses applications commerciales et industrielles telle que [20] :

- Production d'ozone .
- Filtrage des particules contenues dans l'air (système d'air conditionné) .

- Destruction de particules organiques contenues dans l'atmosphère : pesticide, solvant, ...etc.
- Traitement de surface de certain polymère .
- Photocopieur .
- Laser à azote.
- Séparation électrostatique de matières conductrices et non-conductrices.

I.7. PHÉNOMÈNE DE CONDUCTIONS DE CHARGES DANS LES POLYMÈRES

Toute charge électrique entraînée dans un mouvement ordonné par un champ électrique constitue ce que nous appelons la conduction électrique. Les charges électriques susceptibles de donner ainsi naissance à un courant électrique sont des ions ou des électrons (à défaut des trous) [22]. Il existe plusieurs mécanismes de conduction différents dans le polymère en peut citer :

I.7.1. Polarisation sous champ statique

Dans les isolants, la polarisation diélectrique est observée dans les éléments contenant des charges électriques comme les électrons, les atomes, les molécules, macromolécules et les charges aux interfaces et créées par les défauts dans le matériau hétérogène. Plusieurs types de polarisation peuvent être identifiés suivant la polarisabilité α de chaque élément [21]:

Polarisation électronique : Le champ électrique provoque un léger déplacement des nuages électroniques vis-à-vis du noyau des atomes. Le temps d'établissement de cette polarisation est très court ($\sim 10^{-15}$ s) et s'accompagne d'une émission de lumière.

Polarisation atomique : Elle correspond au déplacement d'atomes ou de groupes d'atome dans la molécule sous l'influence d'un champ électrique externe. Ce phénomène atteint également rapidement l'équilibre ($\sim 10^{-12} - 10^{-13}$ s).

Polarisation d'orientation : Cette polarisation décrit l'orientation des éléments possèdent un moment dipolaire permanent. Les dipôles ont tendance à s'orienter suivant le sens du champ appliqué. Le temps d'établissement est beaucoup plus important que dans le cas des deux polarisations précédentes et varie dans une large gamme de temps ($\sim 10^{-9} - 10^3$ s) selon le type de dipôles.

Polarisation interfaciale : elle apparaît dans les matériaux hétérogènes avec des temps de relaxation plus longs que la polarisation d'orientation. Elle provient de l'accumulation des charges aux interfaces entre les différentes phases constituant les matériaux lorsque ces différentes phases ont des permittivités et des conductivités différentes. Quand on applique un champ électrique au matériau, ces polarisations vont apparaître successivement selon le temps d'établissement. Les polarisations électronique et atomique ne sont pratiquement pas affectées par la température tandis que la polarisation d'orientation et la polarisation interfaciale dépendent de la température mais également des paramètres comme l'humidité (en particulier pour les composites).

I-7-2-Transport par sauts (hopping)

L'effet de saut (hopping) dépendant linéairement du champ électrique est purement quantique puisqu'il joue sur la probabilité non nulle (renforcée aux alentours du niveau de Fermi) qu'un électron (ou trou) puisse aller vers un niveau d'énergie inoccupé [22].

A cause du désordre existant dans les polymères, il est naturel de supposer que le phénomène de transport élémentaire s'effectue par transfert de charge entre deux molécules adjacentes ou deux segments de la même chaîne de polymère. Les porteurs se déplacent par saut (hopping) d'un état à un état voisin [21].

Le phénomène de conduction par saut, aussi appelée « hoping » implique l'existence de plusieurs niveaux plus ou moins repartis dans la bande interdite de l'isolant. Toute fois, ces sites doivent être suffisamment proches, spatialement et/ou énergétiquement, les uns des autres de façon à ce que les orbitales de ces sites se recouvrent. Une charge de nature quantique a ainsi une certaine probabilité de passer d'un piège à l'autre sans effort particulier. Ainsi des charges se déplacent en « sautant » de site en site. Généralement, ce type de conduction est mis en évidence à très basse température bien évidemment, cette conduction dépend des caractéristiques du matériaux : nombre de pièges, distance moyenne les séparant,...etc. « Mott » a montré que la conduction σ s'exprime ainsi [23] :

$$\sigma = \sigma_0 \cdot \exp(-AT^{-1/4}) \quad (\text{I-9})$$

Où A est une constante dépendant de la densité et de la nature des pièges

I.8. 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 utilisés dans le domaine de l'industrie. Ensuite on a vu que l'humidité est un facteur très important dans l'industrie qui influence beaucoup sur les propriétés des matériaux due à la nature polaire de l'eau. Finalement, la technique de chargement par effet couronne a été introduite comme technique contrôlable et reproductible pour le chargement des isolants.

Références du chapitre I

- [01] Nouredine ZOUZOY, " *Etude de la mobilité moléculaire du PEN destiné à la fabrication des condensateurs : influence de la microstructure*", Thèse de doctorat, l'université Paul Sabatier, (2002).
- [02] Benoit TORBIERO, " *Développement de microcapteurs électrochimiques pour l'analyse en phase liquide* ", Thèse de Doctorat de l'Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse, (2006)
- [03] Cour de chimie, " *Généralité sur les polymères*", sur : www.chimie-sup.fr Accueil <http://www.xiti.com/xiti.asp?s=164084>
- [04] A. Kahlouche, " *Contribution à la modélisation des mécanismes de transport de charges électriques dans les polyéthylènes*" Thèse de Magister, Université de Constantine (2000).
- [05] Etienne DUGUET, Jean-Louis PARIENTE, Pierre CONORT, " *Chapitre II : Aspects physico-chimiques des biomatériaux utilisés en Urologie* " Progrès en Urologie, n°15, p. 865-886, (2005).
- [06] Gauthier JARROUSSE, " *Adhésion des polymères semi-cristallins entre leur température de transition vitreuse et leur température de fusion*", Thèse de doctorat de l'université Paris VI, (2004).
- [07] Marc Carrega, " *Rappels sur l'histoire et les propriétés particulières des polymères*" membre de la SFC et du Groupe Français des Polymères, L'actualité chimique - mars (2002).
- [08] " *Matière plastique*" Un article de Wikipédia, l'encyclopédie libre 2007, Sous les termes de la licence de documentation libre GNU (GFDL), Récupérée de http://fr.wikipedia.org/wiki/Matière_plastique
- [09] F. VIVIER, " *Les Polymères*" Travaux Pratiques IUT Créteil, Vitry Mesures Physiques (1ère année), Ecole Mines Paris, Janvier 2006
- [10] George. Ash et collaborateurs, " *les capteurs en instrumentation industrielle*", BORDAS, Paris (1987), ISBN S2-04-016948-2.
- [11] " *Eau* " Un article de Wikipédia, l'encyclopédie libre 2007. De la licence de documentation libre GNU (GFDL). Récupérée de http://fr.wikipedia.org/wiki/Matière_plastique.
- [12] Tarik 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).

- [13] Bassem KHADDOUR, " *Modélisation du champ électrique modifié par la charge d'espace injectée*", Thèse de doctorat de l'INPG (Institut National Polytechnique de Grenoble), (2006).
- [14] José A. Giacometti and Osvaldo N. Oliveira Jr, " *Corona Charging of Polymer*" IEEE Transactions on Electrical Insulation, vol. 27, n° 5, p. 924 - 943, (1992) .
- [15] A.BELLEL, " *Traitement de surface de polymères par décharge couronne et plasma*", Thèse de doctorat, Université Mentouri, Constantine (2004).
- [16] Alexandre LABERGUE, " *Etude de décharges électriques dans l'air pour le développement d'actionneurs plasmas – Application au contrôle de décollements* " Thèse de doctorat de l'université de Poitiers, (2005).
- [17] S. Cerevisiae , B. Opreacu, D. Giosanu, I. Neagu, " *The experimental study of corona discharge on yeast*", Rom. Journ. Phys, vol. 51, n° 1–2, p. 131–140, Bucharest, (2006).
- [18] J. Chang, Phil A. Lawless, and T. Yamamoto " *Corona Discharge Processes*", IEEE Transactions on Plasma Science, vol. 19, n° 6, p. 1152-1166, (1991)
- [19] M. Morvova, " *The influence of water vapour and temperature on depletion of carbon monoxide in D.C .corona discharge*", Journal of Physics, vol. 49, n° 12, p.1703-1719, (1999)
- [20] Duc Hoang NGUYEN " *Etude des propriétés électriques des élastomères silicones utilisés pour l'isolation électrique* ", Thèse de doctorat l'Université Joseph Fourier Grenoble, (2005)
- [21] Mohamed BEN KHALIFA, " *Etude du transport et ingénierie de bandes dans les diodes organiques électroluminescentes à hétérostructures*", Thèse de doctorat de l'Ecole Centrale de Lyon, (2004)
- [22] Olivier GALLOT-LAVALLEE, " *Etude de la charge d'espace et des phénomènes luminescents comme précurseurs du vieillissement électrique d'une résine époxy utilisée dans l'isolation haute tension* ", Thèse de doctorat de l'université Paul Sabatier -Toulouse III, (2004).
- [23] Guillaume TARDIEU, " *Apports des mesures de luminescente à la compréhension du piégeage et du transport dans les isolants synthétiques* ", Thèse de doctorat, université Paul Sabatier, (2003).

CHAPITRE II

DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX

DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX

II.1. INTRODUCTION

L'objectif principal de ce chapitre est de présenter les différents dispositifs expérimentaux utilisés dans l'étude de l'effet de présence de la vapeur d'eau sur la décharge électrostatique dans les polymères.

Nous commencerons par présenter le polymère agissant comme substrat lors de nos travaux de recherches. Puis nous décrivons la chambre climatique assurant le chargement et la mesure du potentiel de surface sous atmosphère contrôlée. Le principe de chargement par effet couronne et la mesure du potentiel de surface par la sonde vibrante seront également présentés. En fin de chapitre nous présentons le dispositif expérimental permettant l'adaptation du niveau d'humidité relative à l'intérieur de la chambre climatique.

II.2. MATÉRIAUX ÉTUDIÉ

II.2.1. Généralités

Les recherches sur les matériaux organique ont conduit à l'élaboration d'une famille de polymères « haut performance » dont les propriétés, ont suscité l'intérêt de différentes industries [01]. Parmi ces matériaux on peut citer la famille des polyimides (Kapton), obtenue par une réaction de condensation, c'est pourquoi ses caractéristiques sont affectées par la présence de l'eau [02]. Le film polyimide possède un ensemble unique de propriétés qui le recommandent pour un grand nombre d'applications dans de nombreuses industries. L'aptitude du Kapton à conserver ses excellentes caractéristiques physiques, électriques et mécaniques dans une plage de température tendue ouvre aux films plastiques de nouvelles possibilités de conception et d'application. Le polyimide (PI) est synthétisé par la polymérisation entre un « dianhydride » et une « diamine aromatique ». Le PI ne fond ni brûle, et il se voit attribuer la plus haute classification dans l'échelle de la non-flammabilité. Les caractéristiques exceptionnelles du film PI lui permettent d'être utilisé tant aux hautes qu'aux basses températures, là où d'autres polymères organiques ne seraient pas fonctionnels [01, 03,04]. Ce

matériau est populaire dans la technologie des circuits intégrés (IC) grâce à son excellente résistance thermique (jusqu'au 350°C), son élasticité élevée par rapport à l'époxy à température ambiante et sa flexibilité. Les polyimides gardent leurs propriétés dans le volume et sur l'interface avec les autres matériaux même s'ils ont été soumis aux contraintes superficielles liées à l'humidité et à la température. Néanmoins, les polyimides montrent une sensibilité envers des solutions fortement alcalines [05]. Le principal producteur est le DuPont., l'usine est située à Circleville (Etats-Unis) et produit différents types du film PI : HN, FN et VN. En fin de 1997 DuPont et Hitachi ont créé une filiale commune pour développer des applications en micro-informatique. DuPont fournit le polyimide sous forme de pièces et de produits semi-finis [06,07].

II.2.2 Substrat

Dans notre cas, nous avons travaillé sur le Kapton-HN de DuPont 50µm d'épaisseur. Sa structure chimique est présentée sur la figure (II.1). Un polyimide est une macromolécule qui contient un groupement imide, qui peut être soit linéaire, soit aromatique. Sa structure hautement aromatique lui confère des caractéristiques tout à fait particulières, notamment une très haute température de transition vitreuse (entre 360 et 400 °C), donc une très large plage thermique d'utilisation allant de -296°C à +400 °C (le Kapton ne brûle pas et ne fond pas), une faible constante diélectrique (3 à 4), une très bonne résistance électrique et une densité relativement faible [08]. Les échantillons ont été découpés sous forme rectangulaire de dimension 2.5x2 cm². La surface est imposée par la surface couverte par la grille de contrôle du potentiel.

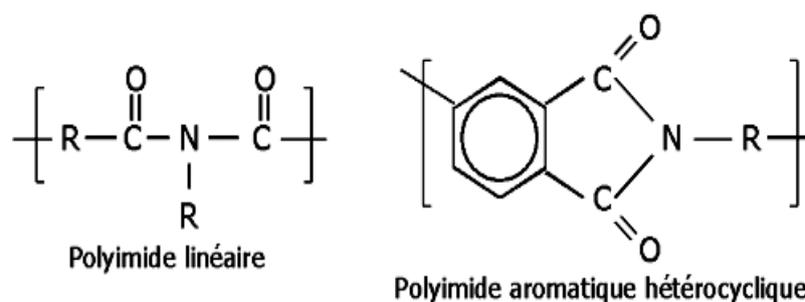


Figure II.1 : Formule chimique du kapton ®[08].

II.2.3 Caractéristiques des films de polyimide

Les films polyimides conservent leurs propriétés sur une plage étendue de températures. Ils ont été utilisés dans des applications pratiques où la température peut s'abaisser à -269°C et s'élever à 400°C [09].

❖ Caractéristiques mécaniques

Coefficient de frottement	0,42
Dureté - Rockwell	E52-99
Elongation à la rupture (%)	8-70
Module de tension (GPa)	2,0-3,0
Résistance aux chocs - IZOD (J m^{-1})	80
Résistance à la traction (MPa)	70-150
Absorption d'eau - sur 24 heures (%)	0,2-2,9
Densité (g cm^{-3})	1,42
Indice de réfraction	1,66
Indice limite d'oxygène (%)	53
Résistance à la radiation	Bonne

❖ Caractéristiques thermiques

Chaleur spécifique ($\text{J K}^{-1} \text{kg}^{-1}$)	1090
Coefficient d'expansion thermique ($\times 10^{-6} \text{K}^{-1}$)	30-60
Conductivité thermique à 23C ($\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$)	0,10-0,35
Temp. de déflexion à la chaleur - 1,8 MPa (C)	360
Temp. maximale d'exploitation (C)	250-320
Temp. minimale d'exploitation (C)	-270

❖ Caractéristiques électriques

Constantes diélectriques à 1 MHz	3,4
Facteur de dissipation à 1 kHz	0,0018
Résistance diélectrique (kV mm ⁻¹)	22
Résistivité de surface (Ohm/carré)	10 ¹⁶
Résistivité volumique (Ohm cm)	10 ¹⁸

La teneur en eau du film polyimide KAPTON peut influencer sur ses propriétés électriques [02].

II.2.4 Application du polyimide dans l'industrie

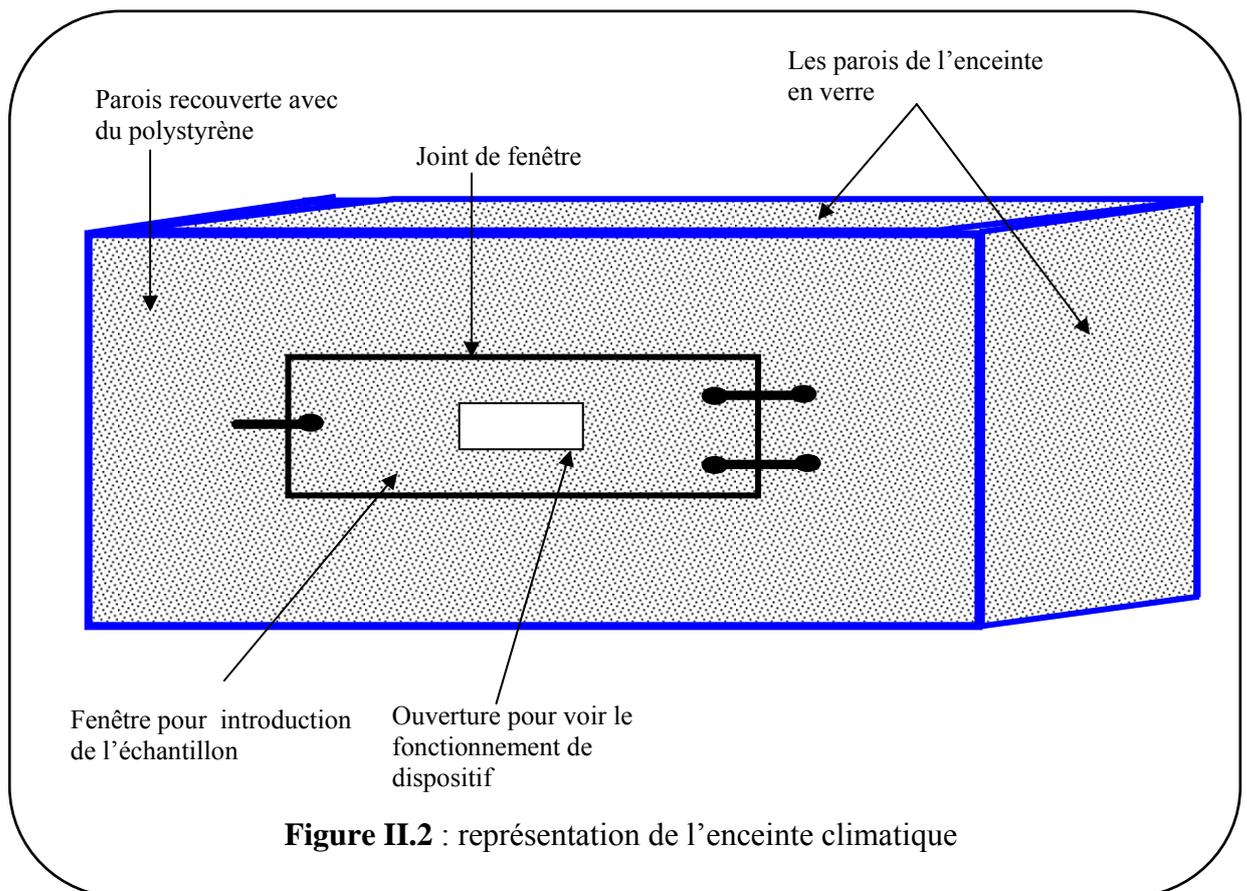
Les applications du film polyimide englobent une grande variété d'isolations électriques et électroniques : rubans pour fils et câbles, isolation de bobinages de transformateurs, diélectrique pour condensateurs, rubans magnétiques et rubans adhésifs et tubes pour isolation. De nombreuses applications sont basées sur l'excellent équilibre des caractéristiques électriques, thermiques, mécaniques, physiques et chimiques de kapton et ce, sur une plage étendue de température. C'est la combinaison de ces propriétés précieuses aux températures extrêmes qui fait du kapton un matériau industriel incomparable [02]. Les applications des polyimides sont très nombreuses, pour des usages très précis pour lesquels leurs propriétés apparaissent indispensables malgré leur prix élevé. Ces applications se trouvent surtout [07] :

- ❖ dans l'isolation électrique, sous forme de films rubanés souples Kapton de DuPont, et sous forme rigide, dans la fabrication et pour le développement de circuits imprimés souples.
- ❖ dans l'industrie aéronautique, 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.
- ❖ en mécanique, notamment dans les compresseurs à gaz, par exemple : segments de piston soupapes, vannes, joints d'étanchéité. Des polyimides Vespel ont été utilisés en remplacement de résines phénoliques dans des carburateurs de moteurs à propane ou à gaz naturel, pour des équipements industriels, transpalettes ou autres.

- ❖ dans l'automobile, pour véhicules spéciaux, quand une haute résistance thermique est nécessaire (paliers, éléments coulissants,..... etc).

II.3. LA CHAMBRE CLIMATIQUE

Toutes les procédures expérimentales concernant le chargement par décharge couronne et mesures du déclin de potentiel ont été réalisées à l'intérieur d'une chambre climatique où le taux d'humidité relative et la température peuvent être contrôlés. L'enceinte de forme parallélépipédique de dimensions : longueur 120 cm, largeur 60 cm et hauteur 48cm, avec une fenêtre rectangulaire de surface (58cm x 32cm) pour l'introduction des échantillons. Le système est construit de verre et de plexiglas avec les parois recouvertes de polystyrène de 40 mm d'épaisseur afin de minimiser le transfert de chaleur avec l'extérieur et d'éviter également la condensation de la vapeur d'eau sur les parois de la chambre.



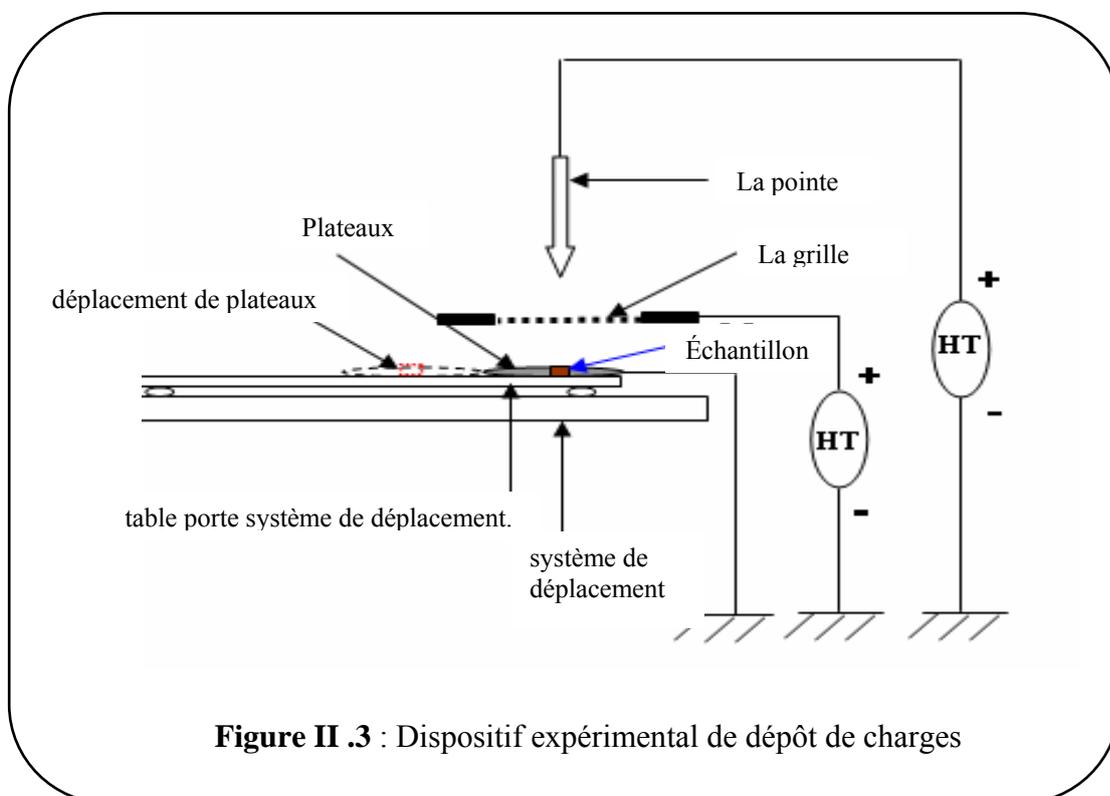
II.4. DISPOSITIF DE CHARGEMENT PAR EFFET COURONNE

La décharge couronne est un dispositif de chargement utilisé essentiellement pour le chargement électrostatique reproductible des isolants. Grâce à cette technique il est possible de déposer des charges aussi bien positives que négatives selon la polarité du système de décharge. Le dispositif expérimental de chargement par effet couronne que nous avons utilisé est constitué essentiellement de (figure II.3):

- Une pointe métallique de Tungstène jouant le rôle de l'électrode à petit rayon de courbure.
- Un générateur de tension continue délivrant un signal continu variable jusqu'à 3KV pour la polarisation de la grille.
- Une alimentation pouvant délivrer une tension de pointe continue élevée variable jusqu'à 10KV. Cette tension a pour rôle d'ioniser l'air au voisinage de la pointe.
- Un plateau relié à la masse jouant le rôle de l'électrode inférieure ou de porte échantillon.

Le plateau (porte échantillon) de forme circulaire, lié à la masse et posés sur un système de déplacement qui permet de déplacer le plateau entre le dispositif de chargement et le dispositif de mesure. Entre la pointe métallique de tungstène et la porte d'échantillon on a interposé une grille métallique dans le but de contrôler le potentiel et d'uniformiser la répartition des charges sur l'échantillon. La grille métallique est polarisée par un générateur qui délivre une tension de même polarité que celui de la pointe avec une valeur inférieure. A cause du champ électrique élevé proche de la pointe, l'air qui normalement est isolant, devient ionisé et les ions résultants (positifs ou négatifs selon la polarité de la pointe) sont dérivés vers l'électrode passive à faible champ. Le seuil de la décharge couronne dépend de l'existence d'un électron libre d'énergie suffisante pour déclencher le phénomène d'avalanche responsable de l'ionisation du gaz. Les électrons sont des agents ionisants effectifs parce que lors des chocs ils transfèrent une partie de l'énergie acquise du champ électrique aux molécules de l'air [10]. Les charges créées par ionisation sont accélérées vers la grille par le champ électrique E_{pg} entre la pointe et la grille qui dépend de la différence de potentiel ($V_p - V_g$). Une fois arrivées au niveau de la grille, un autre champ électrique E_{gs} dépendant de la différence de potentiel ($V_g - V_s$) (V_s potentiel de

surface de l'échantillon) fait accélérer ces charges vers la surface libre de l'échantillon. Ce dernier se chargera donc par le potentiel de la grille de même polarité que celui de la pointe. Au fur et à mesure que le processus de chargement continue, le potentiel de la surface V_s augmente et le champ électrique E_{gs} diminue jusqu'à devenir nul lorsque le potentiel de surface V_s atteint la valeur V_g . A ce moment là, on arrive à la saturation et le processus de chargement s'arrête. Lorsque le temps de chargement est terminé, un système rotatif permet de positionner automatiquement et rapidement l'échantillon sous la sonde de mesure du potentiel de surface pour le relevé éventuel de $V_s(t)$. Les potentiels de la pointe et de la grille (respectivement V_p et V_g) et les distances pointe-grille (D) et grille-échantillon (d) sont choisies de telle façon à éviter le régime d'étincelle [11].



II.5. DISPOSITIF DE MESURE DU POTENTIEL DE SURFACE

Le banc de mesure du potentiel de surface est composé d'un voltmètre électrostatique (Modèle 244A-2) muni d'une sonde vibrante de type Monroe (1017AS). La sonde est placée en regard de la surface de l'échantillon à caractériser (figure II.4). La mesure du potentiel de surface est effectuée sans contact avec le substrat, à champ nul et par passage à zéro du voltmètre électrostatique. Le principe de fonctionnement de la sonde vibrante est expliqué en détail dans la

référence [11]. La sonde est placée à faible distance de l'échantillon (3mm) afin d'avoir un bon temps de réponse. La lecture des mesures se fait à travers la sortie analogique du voltmètre électrostatique grâce à un électromètre de type Keithley commandé par un PC via une carte d'interface IEEE-488. L'évolution du potentiel de surface en fonction du temps $V_s(t)$ ainsi que l'évolution spatial $V_s(x)$ sont enregistrées dans un PC grâce à un logiciel élaboré au sein de notre laboratoire. Après le chargement de la surface de l'échantillon par effet corona, le plateau sera placé automatiquement sous la sonde de mesure. Cette opération prendra uniquement environ 3s pour ne pas manquer la valeur initiale du potentiel de surface V_0 . La sonde de mesure, le système de déplacement ainsi que le dispositif de chargement sont situés à l'intérieur de la chambre climatique. La manipulation des échantillons se fait à travers une fenêtre pour ne pas perturber beaucoup les conditions environnementales à l'intérieur de l'enceinte. Une fois le niveau d'humidité relative et la température sont adaptés, le substrat est chargé à l'intérieur de la chambre climatique 10 minutes avant le lancement de l'opération de chargement et de mesure du potentiel de surface.

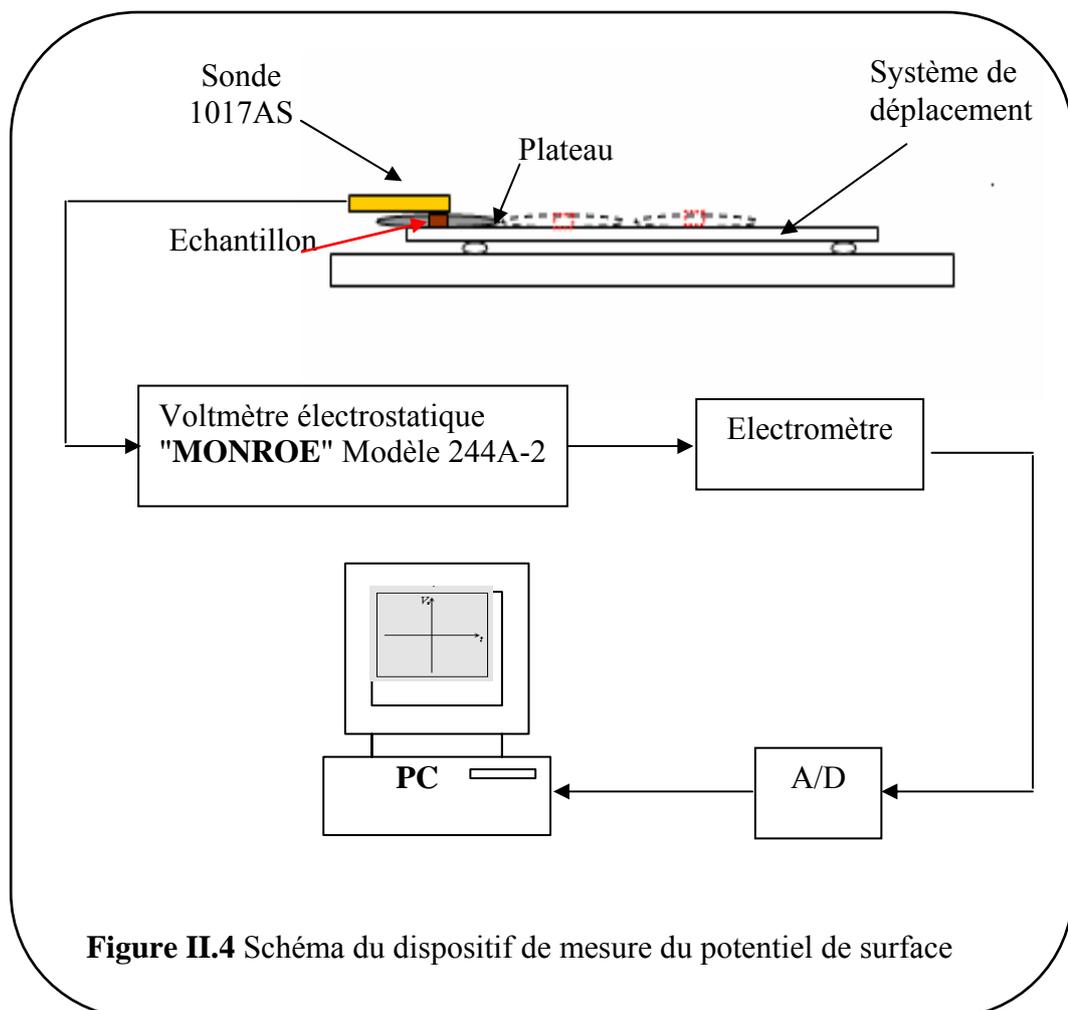
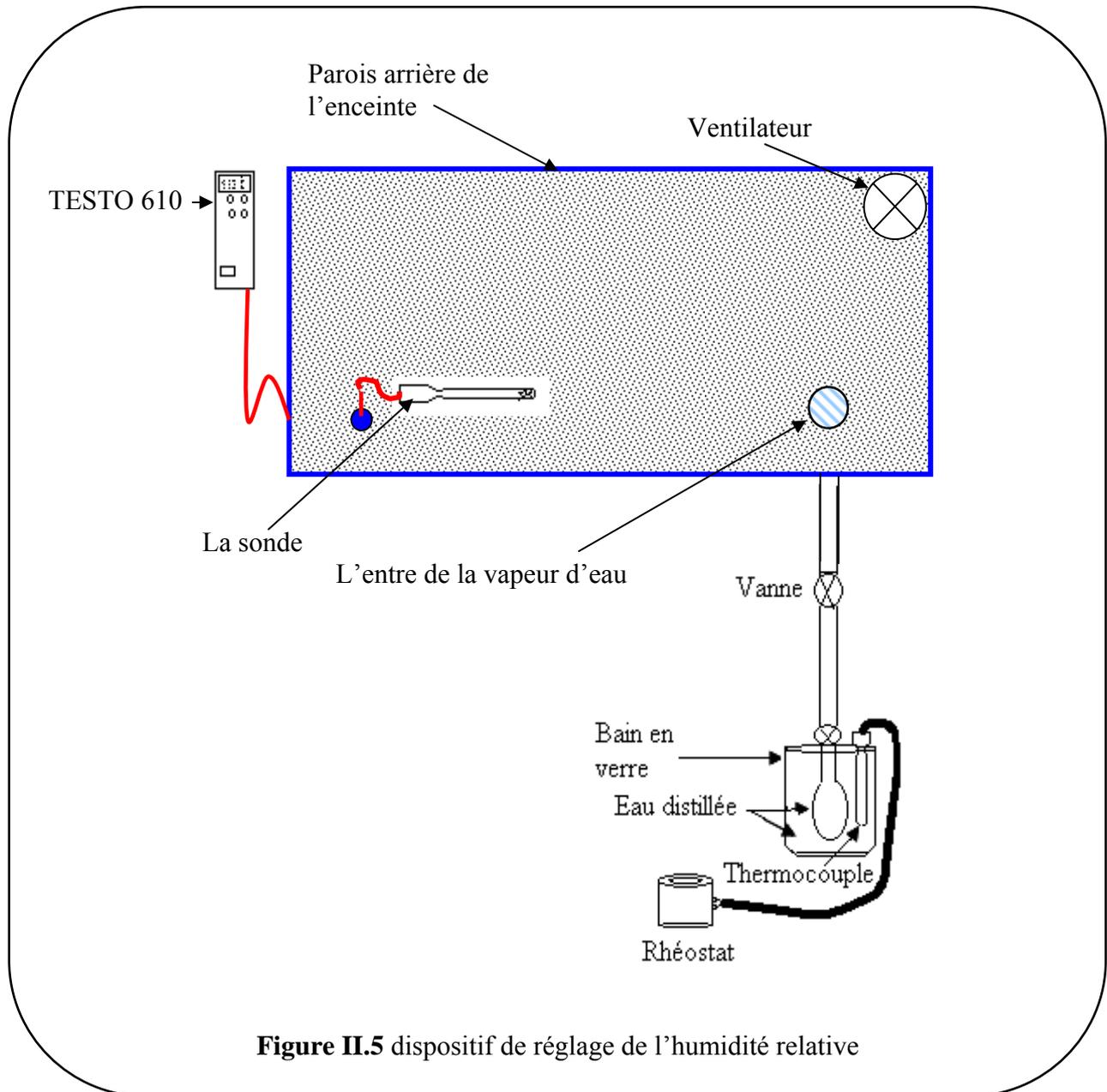


Figure II.4 Schéma du dispositif de mesure du potentiel de surface

II.6. DISPOSITIF DE REGLAGE DU TAUX D'HUMIDITE RELATIVE

Le dispositif de réglage du taux d'humidité relative ainsi que la température à l'intérieur de l'enceinte est représenté sur la figure II.5.



La vapeur d'eau est produite par chauffage d'une bouteille contenant de l'eau déminéralisée. La vapeur d'eau se mélange avec de l'air sec existant à l'intérieur de la chambre pour produire de l'air relativement humide. La vapeur d'eau est introduite dans l'enceinte de

mesure par l'intermédiaire d'une vanne micrométrique afin de bien contrôler le taux d'humidité relative. Toute la canalisation traversée par la vapeur d'eau a été également chauffée pour éviter toute possibilité de condensation de la vapeur d'eau. Un système de ventilation placé sur la face arrière de l'enceinte permet d'évacuer l'air humide et le remplacer par l'air sec. Le système de ventilation est actionné dans le cas où le niveau du taux d'humidité est dépassé. La mesure simultanée du taux d'humidité relative et la température se fait grâce à un hygromètre du type TESTO 610.

II.6.1. Caractéristiques de l'hygromètre TESTO 610

La sonde de mesure de la température et de l'humidité relative présente une bonne stabilité et une faible consommation, elle est conçue pour des applications extérieures et intérieures. On peut facilement la connecter aux centrales d'acquisition. La sonde d'humidité est un appareil qui modifie ses caractéristiques électriques en réponse à une très faible variation de l'humidité. Ces principales caractéristiques sont [12]:

- Alimentation nécessaire : batterie de 9V
- Température de fonctionnement (électronique) : -20°C à +70°C.
- Longueur du câble : 3m standard
- Echelle de mesure : 0 à 100% HR, linéaire.
- Précision de RH : $\pm 2\%$ RH (RH 5-95%); $\pm 2\%$ à 5% (RH >95%) par rapport au calibrage standard.
- Précision de Temperature : ± 0.4 °C (-20 à 0 °C), ± 0.2 °C (0 à 70 °C)
- Constante de temps à 25°C : <15 sec (pour une variation de 63%).

II.7. CONCLUSION

Au cours de ce chapitre, nous avons exposé d'une part, le matériau que nous avons utilisé, le dispositif expérimental de chargement, qui permet de déposer des charges sur la surface du polymère par effet couronne. D'autre part, nous avons exposé les systèmes expérimentaux utilisés pour le réglage du taux d'humidité relative et dispositif de mesure du potentiel de surface. En effet, ce dernier est un outil très utile pour l'étude des processus de transport des porteurs de charges dans le matériau. Par conséquent, il peut être considéré comme une source de renseignements sur les propriétés du matériau.

Références de chapitre II

- [01] Samir ZELMAT, " *Etude des propriétés électriques d'un matériau polyimide à haute températures : Application à la carbure de silicium* ", Thèse de doctorat, universités de Toulouse III- Paul Sabatier, (2006).
- [02] Du Pont de Nemours pour son film polyimide " *Principales Caractéristiques KAPTON* ", De l' OSHA (Occupational Safety and Health), 29 CFR 1910-1000 ; Imprimé en Suisse H-38492-1.
- [03] Benoît DIDIER " *Synthèse d'un Matériau Hybride Polyimide/Silice : Etude Structure Propriétés* " thèse de doctorat, CNRS Université de Savoie, (2005).
- [04] Y. Zhanga, E.T. Kanga, K.G. Neoha, W. Huangb, A.C.H. Huanc, H. Zhangd, R.N. Lambda " *Surface modification of polyimide films via plasma polymerization and deposition of allylpentafluorobenzene* " J, Elsevier Science, Polymère 43, 7279–7288, (2002).
- [05] Benoît TORBIERO, " *Développement de microcapteurs électrochimiques pour l'analyse en phase liquide.* ", Thèse du Doctorat de INSA (Institut National des Sciences Appliquées) Toulouse, (2006).
- [06] Du pont Kapton, " *Générale spécification* ", polyimide film, Bulletin GS-96-7.
- [07] Françoise PARDOS, " *Polyimide PI* " Aspects économiques Technique d'ingénieurs AM 3 397, p. 1-2.
- [08] A. BELLEL, " *Traitement de surface de polymères par décharge couronne et plasma* ", Thèse de doctorat, Université Mentouri, Constantine (2004).
- [09] " *Polyimides (PI)* " Informations sur matériaux de : [http:// www.goodfellow.com](http://www.goodfellow.com).
- [10] J. A. Giacometti, O. N. Oliveira Jr, " *Corona charging of polymers* ", IEEE Trans on EI. 27 924. (1992).
- [11] Z.Zehira, " *Étude de déclin de potentiel de surface d'un film de polypropylène soumis à une décharge couronne* ", Mémoire de Magistère, Université Mentouri, Constantine (2001).
- [12] catalogue d'utilisation des instructions manuelles de " *Sonde d' Humidité Relative Testo 610* "

CHAPITRE III
ÉTUDE DE L'EFFET DE
L'HUMIDITÉ RELATIVE SUR LA
DÉCHARGE ÉLECTROSTATIQUE

ETUDE DE L'EFFET DE L'HUMIDITÉ RELATIVE SUR LA DÉCHARGE ÉLECTROSTATIQUE

III.1. INTRODUCTION

Il est important de quantifier les niveaux de chargement électrostatique des isolants et des polymères en particulier. Cette mesure est une source de renseignements sur l'ensemble des processus électriques existant dans le matériau. Pour pouvoir accéder aux différents phénomènes contrôlant la décharge électrostatique dans les polymères, il est nécessaire de faire des mesures de l'évolution du potentiel de surface au cours du temps $V_s(t)$ appelé généralement le déclin de potentiel et mesure du potentiel de surface sur l'ensemble de l'échantillon $V_s(x, y)$ appelé cartographie.

Après la mise au point de la chambre climatique permettant le chargement par effet couronne et la mesure du potentiel de surface sous une atmosphère contrôlée, nous avons commencé en premier lieu par l'étude du déclin de potentiel de surface d'un film de polyimide d'épaisseur 50 μm préalablement chargé par décharge couronne dans un environnement relativement sec (humidité relative RH= 30%). Ensuite, nous avons enregistré l'effet de l'humidité relative sur la décharge électrostatique dans des films de polyimides.

Enfin, les résultats expérimentaux ont été mathématiquement simulés afin d'étudier l'effet de la présence de la vapeur d'eau sur les paramètres contrôlant la cinétique de décroissance du potentiel de surface.

III.2. ÉTUDE LA DÉCHARGE ÉLECTROSTATIQUE DANS UN ENVIRONNEMENT RELATIVEMENT SEC (RH=30%)

III.2.1. Étude du potentiel de surface $V_s(t)$

Une tension continue $V_p = \pm 6$ kV à été appliquée sur la pointe métallique en tungstène située 15 mm au-dessus de la surface libre du polymère. Une tension continue $\pm V_g$ est appliquée à la grille située 6 mm au-dessus du substrat. Après la procédure de chargement (le temps de chargement a été arbitrairement fixé à 30 s), l'échantillon est rapidement placé sous la Sonde de mesure.

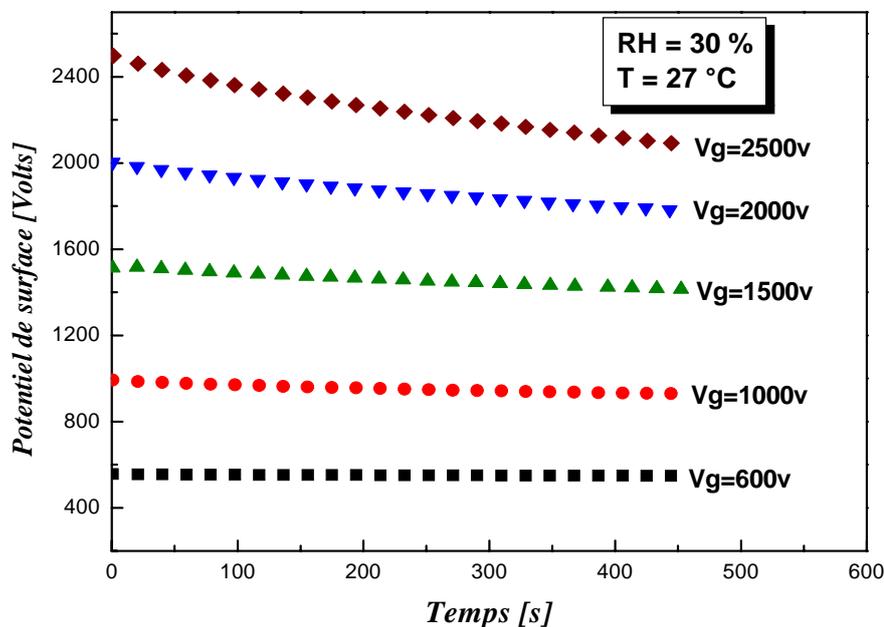


Figure III.1 : déclin de potentiel de surface enregistrée sur un film de polyimide d'épaisseur $d=50 \mu m$ pour différent potentiel de grille.

La valeur du potentiel est mesurée puis enregistrée dans un fichier grâce à un micro-ordinateur pilotant le processus de mesure. L'évolution du potentiel de surface a été enregistrée pendant une période de 10 min. Les variations du potentiel de surface en fonction du temps $V_s(t)$ mesurée pour différents chargements initiaux V_0 (différente tension de grille V_g), sur des films de polyimide d'épaisseur $50 \mu m$ pour un taux d'humidité faible RH=30% et température ambiante $T = 27^\circ C$, sont rapportées sur la figure III.1. On remarque, tout d'abord, que le niveau initial de chargement (potentiel de surface $V_s(0)$) augmente avec la tension de grille V_g , et que la famille de courbe $V_s(t)$ peut être divisée en deux groupes :

Le premier concerne les faibles niveaux de chargement (600-1500 V) caractérisé par un déclin de surface initial très lent suivi par un déclin presque constant. Dans ce cas, les charges déposées à la surface par effet corona n'ont pas assez d'énergie pour être injectées dans le volume 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 en énergie différentes des états de volume et les plus profonds d'entre eux, piègent durablement les charges déposées [1-3].

Le deuxième groupe présente l'allure du déclin de potentiel de surface concernant les forts niveaux d'injections (2000-2500V). Pour ces valeurs de tensions initiales élevées, on observe une décroissance initiale rapide suivie d'une décroissance plus lente avec le temps de mesure. Cette forte décroissance initiale pourrait être attribuée à l'injection d'une fraction des charges déposées sous l'effet du champ créé par ces charges elles-mêmes [4-6]. Ce comportement sera plus prononcé si la quantité initiale de charges déposées augmente. Comme les états de volume sont considérés peu profonds [02], les charges dans le volume sont quasiment libres et peuvent atteindre l'autre face, connectée à la masse, sous l'effet de leur propre champ électrique pendant une durée t_T définie par le temps de transit. Après la durée t_T , le déclin de potentiel devient plus lent. Ce comportement est associé aux charges capturées par les états de surface considérés plus profonds. Ces résultats sont en bon accord avec ceux publiés dans la littérature concernant d'autres polymères tels que LDPE, PTFE, PP [07,08].

Afin de mieux illustrer nos résultats, nous avons tracé la variation du taux de décroissance du potentiel de surface enregistré pendant la durée de mesure (600 s), en fonction de la tension de grille (figure III.2). Il apparaît que le taux de décroissance du déclin de potentiel augmente de façon non linéaire avec la valeur de la tension de grille. La variation de ce taux de décroissance peut être décomposée en deux parties :

La première, concernant les faibles niveaux de chargement et est caractérisée par un faible taux de décroissance. Par exemple pour un chargement initial de 600 V, le potentiel de surface reste à 99 % de sa valeur initiale. Dans la deuxième partie, concernant les forts niveaux de chargement, on observe une augmentation brutale du taux de décroissance. Pour un potentiel de grille de 2500 V, le potentiel de surface perd plus de 16 % de sa valeur initiale. Ces résultats montrent bien que le niveau de chargement initial influe énormément sur la décharge électrostatique dans les films de polyimide.

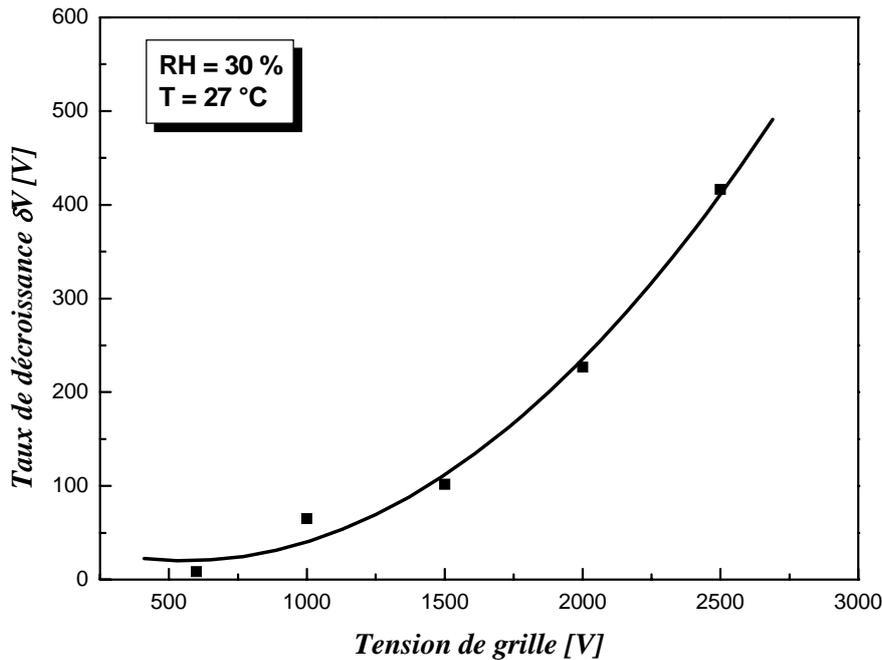


Figure III.2 : variation du taux de décroissance du potentiel de surface δV en fonction de tension de grille

III.2.2 Evolution spatiale du potentiel de surface $V_s(x,y)$ (profil)

Dans ce cas, on a mesuré l'évolution du potentiel de surface le long d'une ligne centrale de l'échantillon et ce, pour plusieurs durées Δt (0min, 15min, 30min, 45min et 60min) afin d'observer d'éventuels conceptions surfaciques. Dans ce cas, le processus de chargement se fait par décharge couronne sans grille afin de charger uniquement une zone centrale de l'échantillon et d'enregistrer le potentiel de surface suivant la directions X. Le système de balayage est assuré par un moteur pas à pas commandé par un PC. Un pas de 0.1mm à été choisi afin d'obtenir une bonne résolution du profil du potentiel de surface. Avant le relevé du profil du potentiel de surface, l'échantillon a été chargé par effet corona dans une humidité relative de 30 %, une température de 27 °C et avec une tension de pointe de 6 KV. Après chargement, le substrat a été transféré immédiatement sous la sonde de mesure du potentiel de surface puis les valeurs du potentiel de surface à travers la longueur de l'échantillon (4cm) ont été enregistrées. Sur la figure III.3 est représenté un ensemble de profils de potentiel de surface mesuré 15 min après la fin de chaque profil. On voit clairement que les charges initialement déposées sont concentrées dans la zone centrale de l'échantillon. La valeur du potentiel de surface dans cette zone dépasse 2800 V. Par contre, hors zone de chargement le potentiel de surface ne dépasse pas 100V. Après 15 min, une décroissance du potentiel central sans aucune augmentation du potentiel périphérique a été observée. Après 60 min, la chute du potentiel central est bien visible. Cette

chute de potentiel dans la zone de dépôt n'est pas compensée par une augmentation du potentiel périphérique. Cette observation importante traduit le fait que l'écoulement des charges en surface n'est pas responsable de la majeure partie du déclin central. Donc on peut conclure que l'évolution temporelle du potentiel de surface, est fortement influencée par la contribution des phénomènes liés au volume du matériau. L'absence de l'étalement des charges a été également observée dans le cas du PP et LDPE [09-11].

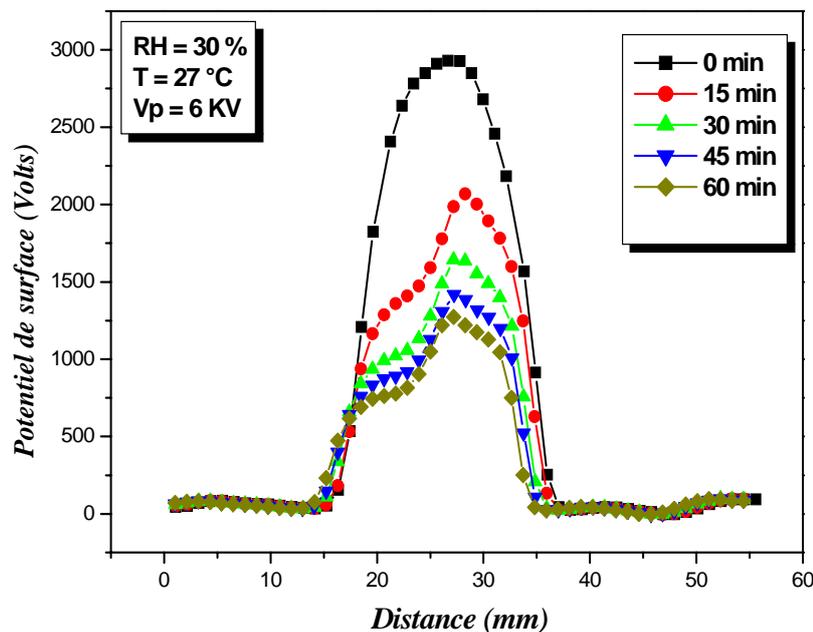


Figure III.3 : Distribution spatiale du potentiel de surface d'un film de PI

III.3. EFFET DE L'HUMIDITÉ RELATIVE SUR LA DÉCHARGE ÉLECTROSTATIQUE DANS UN FILM PI

L'existence d'une interaction eau polymère conduit à une étude plus large de l'effet de l'adsorption et de la diffusion de l'eau dans les polymères peu ou modérément hydrophiles [13]. Dans cette partie, afin de mettre en œuvre l'effet de l'humidité relative sur la décharge électrostatique dans le polyimide, les procédures de chargement et mesures du potentiel de surface ont été refaites mais dans des environnements plus humides. Dans ce cas, l'évolution du potentiel de surface au cours du temps $V_s(t)$ et le potentiel de surface sur l'ensemble de l'échantillon $V_s(x,y)$ ont été mesurés pour différents niveaux d'humidité relative HR.

III.3.1 Mesure du déclin de potentiel de surface en fonction du temps pour différent RH

Les figures III.4 (a-d) représentent le déclin du potentiel de surface normalisé enregistré sur un film de polyimide pour différents niveaux d'humidité relative (HR = 30%, 50% et 80%) et un chargement initial (tension de grille) de 600V, 100V, 2000V et 2500V respectivement. Même pour les faibles niveaux de chargement (600 et 1000 V), on voit clairement que la présence de la vapeur d'eau améliore la décharge électrostatique dans le film de polymère. Pour un chargement initial de 600V dans un environnement relativement sec, le potentiel de surface reste presque à 99 % de sa valeur initiale après un temps de mesure de 600 s. Lorsque le taux de RH augmente à 80 %, le potentiel de surface perd plus de 12% de sa valeur initiale. Par contre, pour les forts niveaux de chargements, l'effet de la présence de la vapeur d'eau sur la décharge électrostatique est plus prononcé. Le taux de décroissance du potentiel de surface augmente significativement avec l'augmentation du niveau de RH. Pour un niveau de chargement initial de 2500 V, le potentiel de surface perd environ 10 % de sa valeur initial dans un environnement relativement sec (RH = 30 %), cependant, dans un environnement plus humide (RH = 80 %), le potentiel de surface perd plus de 60 % de sa valeur initial. De ces résultats, on peut conclure que l'interaction eau-polymère influe énormément sur la décharge électrostatique et que les caractéristiques du déclin de potentiel changent systématiquement avec la teneur en eau du film. Pour le film de polyimide qui contient une grande variété de groupement chimique fonctionnel, comme par exemple les liaisons d'éther (C–O–C), les groupes carbonyle (C=O) et les fonctions de C–N [12], le mécanisme fondamental qui permet d'expliquer l'effet de l'humidité sur les caractéristiques du déclin de potentiel est l'adsorption de l'eau en phase vapeur due à l'interaction des molécules d'eau avec ces groupement polaires.

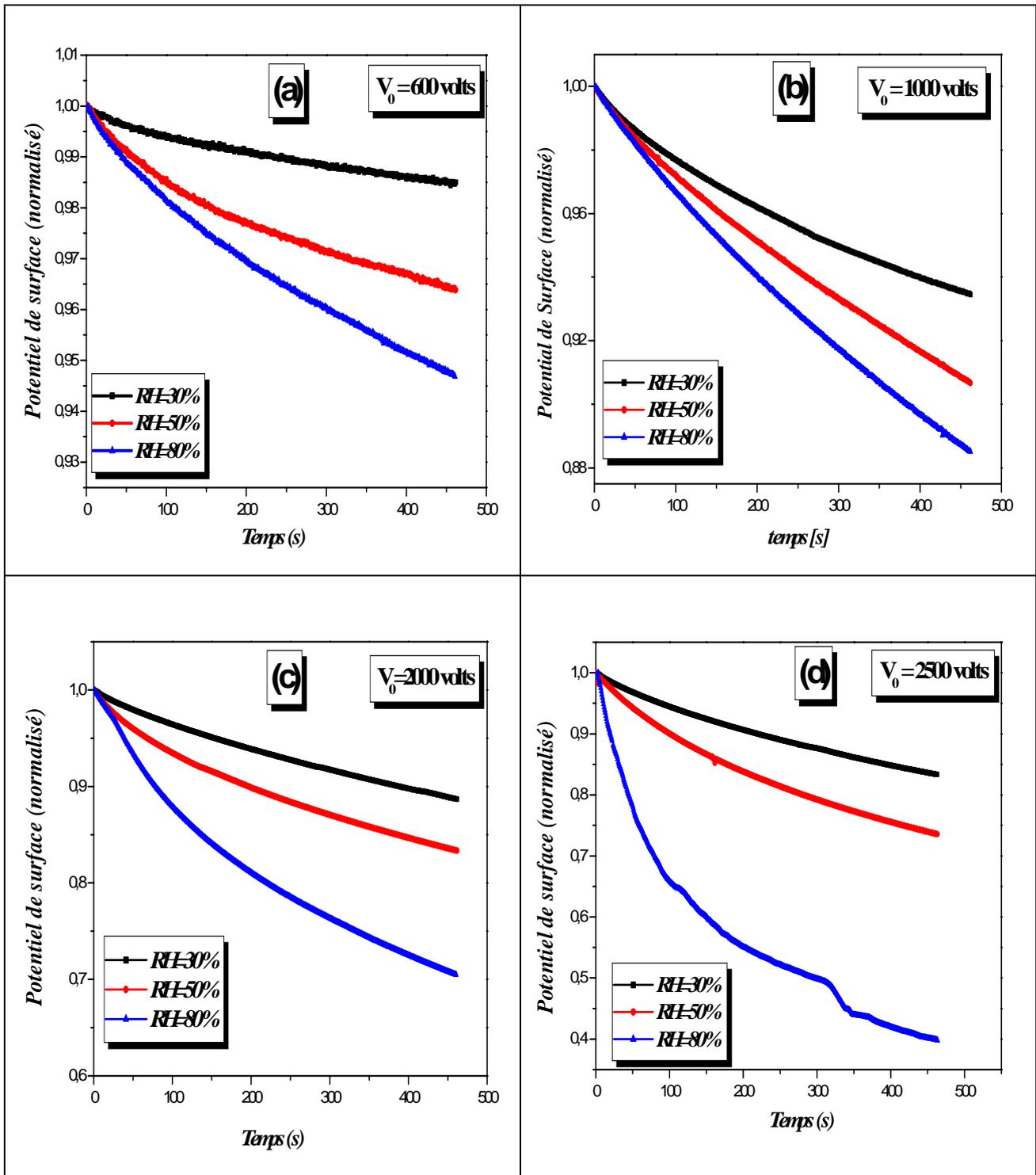


Figure III.4 : Déclin du potentiel de surface enregistré pour différent niveau d'humidité relative (30%, 50% et 80%) et de tension de grille de :
 (a) 600V, (b) 1000V, (c) 2000V et (d) 2500V.

Le processus d'adsorption peut être divisé en deux étapes : adsorption chimique (chimisorption) et la physisorption [13]. La monocouche initiale est chimisorbée en raison de la formation des ions d'hydroxyle OH^- sur la surface, dérivant du mécanisme de dissociation des molécules d'eau par le champ électrique local créé par les charges déposées par effet corona. Les groupements hydroxyle chimisorbés augmentent la conductivité du film par le processus de saut des protons entre les groupes hydroxyles adjacents. Le processus de l'absorption chimiques se produit aux bas niveaux d'humidité relative et cette couche une fois formée, n'est pas davantage affecté par l'exposition à l'humidité. Cependant, une augmentation du niveau d'humidité fait apparaître le phénomène de la physisorption de molécules d'eau sur cette couche d'hydroxyle [14,15]. Après, quand la quantité de molécules physisorbées commence à augmenter, des molécules d'eau seront légèrement liées avec des groupes hydroxyle et un proton peut être transféré à partir d'un groupe hydroxyle à la molécule d'eau pour former un ion hydronium H_3O^+ [14,15]. Lorsque le niveau d'humidité relative augmente, le nombre de couches physisorbées augmente et le transport de charge se produit quand les ions H_3O^+ libèrent un proton aux molécules d'eau voisines, qui l'acceptent en libérant un autre proton et ainsi de suite. Le processus de saut de proton entre les molécules d'eau adjacentes est connue sous le nom de réaction en chaîne de Grothuss [16,17].

Nos données expérimentales, présentées ci-dessus, peuvent être expliquées par ces processus d'adsorption et de transport de charge, comme il a été suggéré par des investigations effectuées sur des matériaux similaires [18, 19]. Dans un environnement hautement humide, la condensation capillaire de la vapeur d'eau devient importante et la concentration des protons H^+ augmente, comme l'ion H^+ est très petit, sa mobilité sera plus grande que d'autres ions mobiles, donc, H^+ peut contribuer bien à la dépendance du taux d'humidité relative sur le déclin de potentiel.

Sur la figure III.5 nous avons tracé la variation du taux de décroissance du potentiel de surface enregistré pendant une durée de mesure de 600 s, en fonction de la valeur du champ électrique initial. En premier lieu on remarque que le taux de décroissance du déclin de potentiel augmente de façon non linéaire avec la valeur du champ électrique initial, quelque soit le niveau d'humidité relative dans la chambre de mesure. En plus, la chute de potentiel de surface augmente avec l'augmentation du taux d'humidité relative. L'augmentation est accentuée lorsque l'humidité relative atteint un niveau fort. Par exemple pour un champ électrique initial de 3×10^7 V/m, la chute de potentiel de surface est d'environ 100, 150 et 200 V lorsque le niveau

de HR dans la chambre climatique est de 30, 50 et 80 %, respectivement. Par contre, pour un champ électrique initial élevé de l'ordre de 5×10^7 V/m, la chute de potentiel de surface est d'environ 200, 400 et 1400 V lorsque le niveau de RH dans la chambre climatique est de 30%, 50% et 80 %, respectivement. Donc, on voit clairement que l'effet de la présence de la vapeur d'eau sur la décharge électrostatique dans les films de polyimides est plus prononcé pour les forts niveaux de chargement initiaux. Ce comportement est dû à l'augmentation du processus de dissociation de la molécule d'eau par le champ électrique local. Ces résultats montrent bien que le niveau de chargement initial ainsi que le taux d'humidité relative influent énormément sur la décharge électrostatique dans les films de polyimides.

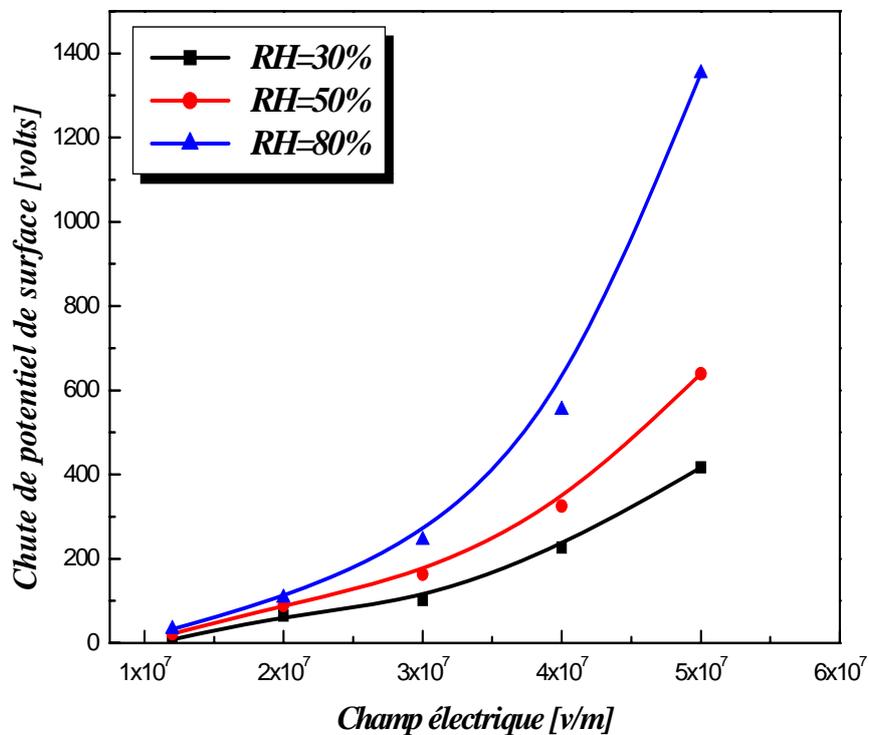


Figure III.5 : Evolution de la chute de potentiel de surface en fonction du champ électrique pour différent taux de RH

III.3.2 Effet de HR sur le profil de potentiel de surface

Afin d'observer d'éventuels conduction surfacique en cas de présence de forte concentration de vapeur d'eau, l'évolution du potentiel de surface le long d'une ligne centrale de l'échantillon a été enregistrée pour plusieurs durées Δt (0min, 15min, 30min, 45min et 60min). Le processus de chargement se fait par décharge couronne sans grille afin de charger uniquement une zone centrale de l'échantillon en présence d'air humide. Avant le relevé du profil du

potentiel de surface, l'échantillon a été introduit 10 min dans la chambre climatique avant d'être chargé par effet corona dans une humidité relative de 50% et 80%. Sur les figure III.6a et III.6b sont représentés un ensemble de profils de potentiel de surface mesuré 15 min après la fin de chaque profil dans un moyen (50%) et fort (80%) niveau d'humidité relative, respectivement. En premier lieu, on remarque que pour les deux niveaux de RH, les charges initialement déposées sont concentrées dans la zone centrale de l'échantillon, cependant, hors zone de chargement le niveau de chargement est pratiquement nul. Pour les deux valeurs de RH, lorsque le temps augmente, la décroissance du potentiel central augmente sans aucune augmentation du potentiel périphérique. Donc, dans un environnement humide, la chute du potentiel dans la zone de dépôt n'est pas également compensée par une augmentation du potentiel périphérique. Donc on peut conclure que l'amélioration de la décharge électrostatique en présence de molécules d'eau est fortement influencée par la contribution des phénomènes liés au volume du matériau.

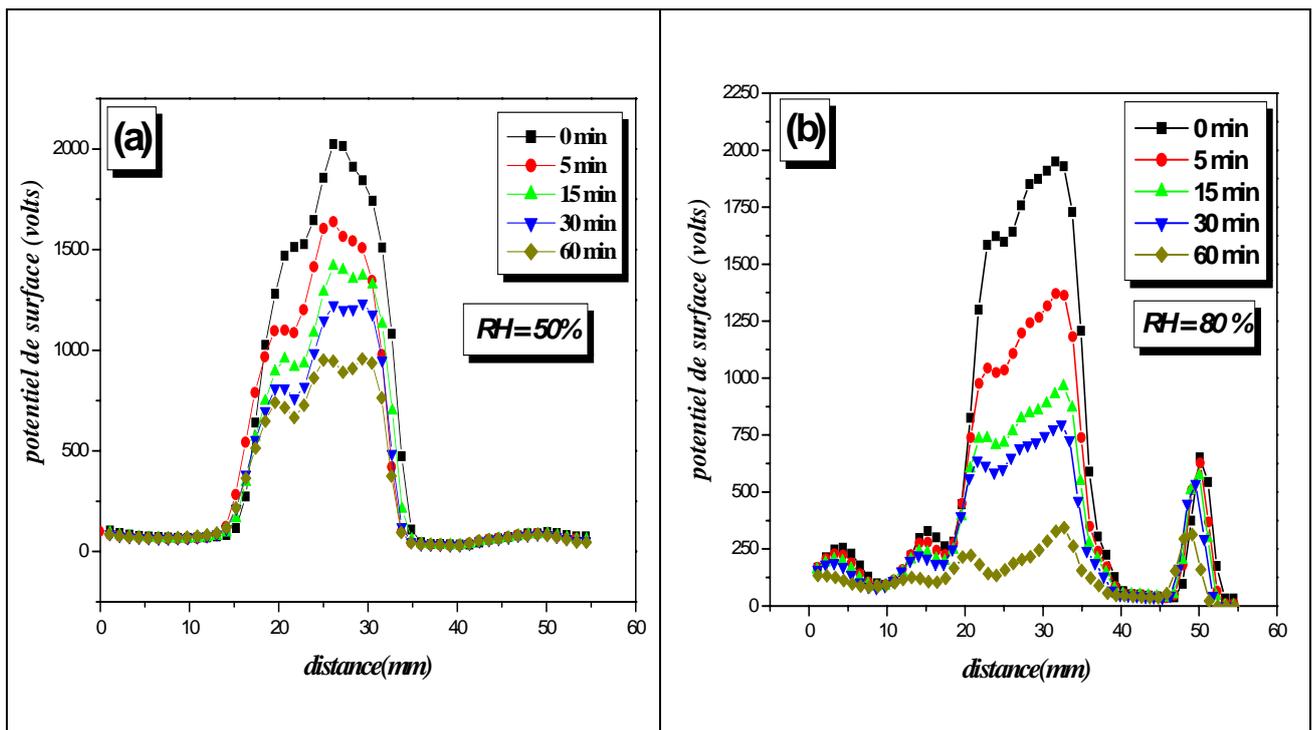


Figure III.6 Evolution du profil de potentiel de surface en fonction du temps pour:
(a) RH = 50 % et (b) RH = 80 %.

III.4. CONCLUSION

Le suivi du déclin de potentiel avec le temps a montré que la décharge électrostatique dans un environnement relativement sec est beaucoup influencée par le niveau de chargement initial. La chute de potentiel de surface augmente significativement avec la tension initiale. Le profil du potentiel de surface relevé pendant différentes périodes de temps indique l'absence de l'écoulement latéral des charges déposées et l'évolution temporelle du potentiel de surface est fortement influencée par la contribution des phénomènes liés au volume du matériau.

Dans un environnement plus humide, l'évolution du potentiel de surface en fonction du temps a montré que la présence de la vapeur d'eau augmente la décharge électrostatique dans les films de polyimide et cette augmentation était plus accentuée lorsque le niveau de chargement était plus fort. L'augmentation du taux de décroissance du potentiel de surface a été attribuée à la dissociation de molécules d'eau par le champ électrique local créé par les charges déposées. La dissociation de molécules d'eau engendre une forte concentration de protons qui peuvent influencer la conductivité du film de polyimide.

L'étude du profil de potentiel de surface en présence de moyen et fort taux d'humidité relative a révélé également l'absence de conduction surfacique. Donc, même en présence de forte concentration d'eau, le déclin de potentiel est majoritairement lié aux phénomènes volumiques de l'échantillon.

références du chapitre III

- [01] E. Motyl, B. Lowkis, "Effect of Air Humidity on Charge Decay and Lifetime of PP Electret Nonwovens" *FIBRES & TEXTILES in Eastern Europe*, Vol. 14, n°. 5 (59), p.39-42, (2006)
- [02] Matthieu TOUZIN, "transport de charges dans les alumines polycristallines application a l'optimisation de la rigidite dielectrique", These de doctorat l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Étienne et de l'Université Jean Monnet, N° d'ordre : 384 SGM, (2005)
- [03] Guan-Jun Zhang , Kai Yang, Ming Dong, Wen-Bin Zhao, Zhang Yan, "Surface electroluminescence phenomena correlated with trapping parameters of insulating polymers", *J , Applied Surface Science*, vol. 2, n°.54, p. 1450–1455, (2007)
- [04] K. Fukunaga and T. Maeno, "Measurement of space charge distribution in a polyimide film", *Trans. IEE Japan*, Vol. 114-A. pp. 560-561, 1994.
- [05] K. Fukunaga and T. Maeno, "Space charge observation of polyimide films under dc electrical fields ", *International conference on solid dielectrics*, Toulouse, France, july 5-9, 2004
- [06] Z. Wang, C. Chen, T. Zhang, H. Guo, B. Zou, R. Wang, F. Wu, Humidity sensitive properties of K⁺-doped nanocrystalline LaCo_{0.3}Fe_{0.7}O₃, *Sens. Actuators B* 126 (2007) 678-683.
- [07] P MoliniC, P Llovera "Surface potential measurements: implementation and interpretation", *France Dielectric Materials, Measurements and Applications No. 473*, IEE p.253_258, (2000).
- [08] Jian and Xia Zhongfur, "INFLUENCE OF ENVIRONMENT HUMIDITY ON PROPERTIES OF FEP, PTFE, PCTFE AND PI FILM ELECTRETS"; *IEEE Trans. Electr. Insul. EI*, p.95-100, (1994)
- [09] M. Ieda, G. Sawa and U. Shinohara, "Decay of electric charges on polymeric films", *Electr. Eng. Jap.*, vol.88, pp. 73-88, June, 1968.
- [10] Y. Hori, "The lateral migration of surface charges on poly(methyl methacrylate) graft-copolymerized onto polypropylene films and its dependency on relative humidity", *J. Electrostatics*, vol.48 pp. 127-143, Jan. 2000.
- [11] D. K. Das Gupta, "Electrical properties of surfaces of polymeric insulators", *IEEE Trans. Elect. Ins.*, vol.27, pp. 909-923, Oct. 1992
- [12] Marta M.D. Ramos* "Theoretical study of metal–polyimide interfacial properties" *Vacuum*, 64, 255–260, (2002)

- [13] W. J. Fleming, A physical understanding of solid state humidity sensors, Society of Automotive Engineers transactions section 2 90 (1987) 247-267.
- [14] E.C. Dickey, O.K. Varghese, K.G. Ong, D. Gong, M. Paulose, C.A. Grimes, Room temperature ammonia and humidity sensing using ordered nanoporous alumina films, *Sensors* 2 (2002) 91-110.
- [15] Z. Wang, C. Chen, T. Zhang, H. Guo, B. Zou, R. Wang, F. Wu, Humidity sensitive properties of K⁺-doped nanocrystalline LaCo_{0.3}Fe_{0.7}O₃, *Sens. Actuators B* 126 (2007) 678-683.
- [16] Perlman M M and Sonnonstine T J 1975 Charge dissipation and transport mechanisms in insulators *Proc. Int. Symp. Electrets and Dielectrics (Sao Carlos, Brazil)* pp 337–55
- [17] H. Sodolski , M. Kozlowski "DC conductivity of silica xerogels", *Applied Physics and Mathematics*, 2, 80-952, (1995).
- [18] Wintle H J 1972 Surface-charge decay in insulators with non-constant mobility and with deep trapping *J. Appl. Phys.* **43** 29 27–30
- [19] J Baum E A, Lewis T J and Toomer R 1977 Decay of electrical charge on polyethylene film *J. Phys. D: Appl. Phys.* 10 487–97

CHAPITER IV

***MODELISATION DU DÉCLIN DE
POTENTIEL DE SURFACE D'UN
FILM DE POLYMÈRE***

MODÉLISATION DE LA DÉCHARGE ÉLECTROSTATIQUE DANS UN FILM DE POLYIMIDE

IV.1. INTRODUCTION

Dans le chapitre précédent nous avons clairement vu que pour un film de polyimide préalablement chargé par effet corona, la présence de la vapeur d'eau augmente significativement la rapidité de la décharge électrostatique. L'augmentation était plus prononcée pour les forts niveaux de chargement initiaux. Afin d'estimer les valeurs des paramètres contrôlant la cinétique de décroissance du potentiel de surface, nous avons procédé à une simulation théorique du déclin de potentiel.

Dans cette partie nous nous intéressons à la modélisation du déclin de potentiel de surface que nous avons enregistré sur les films de polyimide soumis à une décharge couronne. La modélisation est basée sur le développement d'un modèle numérique de transport de charges qui permettra de décrire les phénomènes observés expérimentalement. Le transport de charges dans des isolants peut être traité par des modèles théoriques variés basés principalement sur différentes hypothèses concernant la mobilité des charges, la vitesse de dérive, le piégeage et dépiégeage des charges. Le modèle décrivant le mouvement des charges dans le diélectrique repose sur la résolution des équations couplées de transport, de continuité et de Poisson [01,02].

L'hypothèse que le transport des charges injectées dans le volume du polyimide est un processus caractérisé par quatre paramètres : la mobilité des porteurs entre les sites de piégeage et sa dépendance du champ électrique, le temps moyen libre avant d'être capturés et le temps moyen de résidence dans les pièges avant d'être libérés [03].

IV.2. MODÈLE THÉORIQUE UTILISÉ

Considérons un film de polyimide PI de permittivité relative $\epsilon_r = 3.4$ dans une configuration de circuit ouvert, avec une face considérée libre pour déposer les charges et l'autre en contact avec une plaque métallique reliée à la masse (Figure IV.1). Une densité de charge surfacique σ_0 ($C.m^{-2}$) déposée sur la surface libre par une décharge couronne négative. Une fraction α_0 (proportion de charge injectée) de σ_0 est immédiatement injectée dans le volume et dérive par le champ local vers la face arrière (la masse). La fraction restante $(1-\alpha_0)$ sera donc considérée durablement piégée.

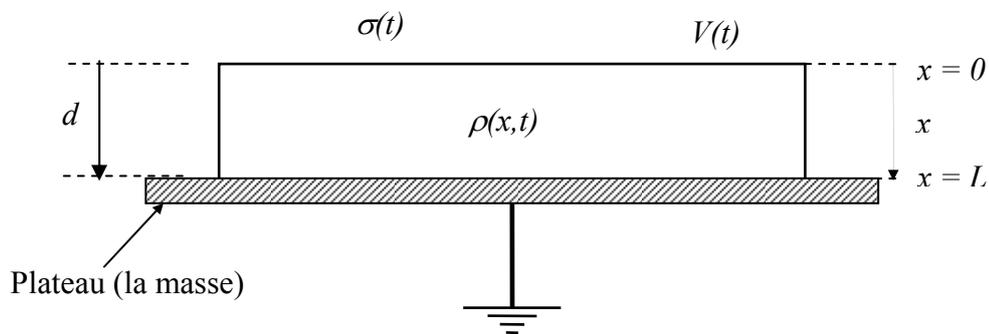


Figure IV.1 : Schéma de l'échantillon reposant sur un plateau relié à la masse avec une densité surfacique $\sigma(t)$ et une densité volumique $\rho(x,t)$

Le modèle mathématique utilisé repose sur des hypothèses utilisées dans la plupart des travaux publiés dans la littérature [04,05]. On considère que la décroissance du potentiel n'est due qu'à des propriétés de volume : polarisation, conduction et piégeage dans le volume de l'isolant.

Si on suppose maintenant que la conduction dans le matériau est unipolaire (assurée par un seul type de porteurs de charge q), de mobilité μ et se fait selon la direction (x) (celle de l'épaisseur du film), alors le mouvement des porteurs de charges injectées dans le volume est gouverné par les équations reportées ci-dessous:

Dans le cas d'une configuration ouverte, la densité du courant totale mesurée par le circuit extérieur est donnée par l'expression :

$$J(t) = \mu \cdot \rho_F(x,t) \cdot E(x,t) + \varepsilon_0 \varepsilon_r \cdot \frac{\partial E(x,t)}{\partial t} - D \cdot \frac{\partial \rho_F(x,t)}{\partial x} \dots \dots \dots \text{(IV-01)}$$

L'expression de la densité du courant est composée de trois termes représentant respectivement:

- La densité du courant de conduction
- La densité du courant de déplacement
- La densité du courant de diffusion

Au l'instant t après la fin de décharge, $\rho_F(x,t)$, $\rho_T(x,t)$ et $E(x,t)$ représentent respectivement les densités de charges libres et piégées et le champ local à la profondeur x à l'instant t.

En l'absence de diffusion Dans une configuration de circuit ouvert, le courant extérieur est nul et on a alors [07,08]:

$$J(t) = \rho_F(x,t) \cdot \mu \cdot E(x,t) + \varepsilon_0 \varepsilon_r \cdot \frac{\partial E(x,t)}{\partial t} = 0 \quad \text{(IV-02)}$$

L'équation de Poisson s'exprime comme :

$$\frac{\partial E(x,t)}{\partial x} = \frac{\rho_F(x,t)}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} + \frac{\rho_T(x,t)}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} \quad \text{(IV-03)}$$

En plus de ces équations, pour des centres de piégeage situés à une force simple; il faut rajouter l'équation qui caractérise le phénomène de piégeage et de dépiégeage [07,08]:

$$\frac{\partial \rho_T(x,t)}{\partial t} = \frac{\rho_F(x,t)}{\tau_T} - \frac{\rho_T(x,t)}{\tau_F} \quad \text{(IV-04)}$$

$\frac{\rho_F(x,t)}{\tau_F}$ représente le taux d'augmentation des charges $\rho_T(x,t)$ dû au piégeage des porteurs libres [08].

$\frac{\rho_T(x,t)}{\tau_T}$ représente le taux de diminution de la densité de charges piégées $\rho_T(x,t)$ dû au dépiégeage des porteurs déjà piégés.

Le transport dépend aussi du temps moyen entre deux captures τ_F donné par [08,09] :

$$\tau_F = [(N_T - n_T) \cdot v \cdot S_C]^{-1} \quad (\text{IV-05})$$

où $(N_T - n_T)$ est la densité volumique de pièges vides,

S_C : la section efficace de capture des porteurs libres,

v : la vitesse des charges libres.

Il dépend également du temps moyen τ_T durant lequel les porteurs sont immobilisés dans les pièges et qui est donné par [03,09] :

$$\tau_T = \left(\delta \cdot \exp\left(-\frac{E_T}{KT}\right) \right)^{-1} \quad (\text{IV-06})$$

Où δ est la fréquence des tentatives de saut, E_T la profondeur énergétique du piège à la température T et k la constante de Boltzmann.

De l'équation (IV-02) on obtient :

$$\frac{\partial E(x,t)}{\partial t} = -\frac{\mu}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} \cdot \rho_F(x,t) \cdot E(x,t) \quad (\text{IV-07})$$

Et de l'équation (IV-3) on trouve :

$$\rho_F(x,t) = \varepsilon_0 \varepsilon_r \frac{\partial E(x,t)}{\partial x} - \rho_T(x,t) \quad (\text{IV-08})$$

En remplaçant l'expression de $\rho_F(x,t)$ dans l'équation (IV-04) on trouve :

$$\frac{\partial \rho_t(x,t)}{\partial t} = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_r}{\tau_F} \cdot \frac{\partial E(x,t)}{\partial x} - \rho_T(x,t) \cdot \left(\frac{1}{\tau_F} + \frac{1}{\tau_T} \right) \quad (\text{IV-09})$$

L'évolution du potentiel de surface en fonction du temps $V_s(t)$ (déclin de potentiel) est calculée par intégration directe du champ local $E(x, t)$ calculé en tout point de l'épaisseur et à chaque instant t . Dans ce cas, le potentiel de surface $V_s(t)$ est donné par:

$$V_s(t) = \int_0^d E(x, t) \cdot dx \quad (\text{IV-10})$$

Diverses méthodes ont été utilisées pour résoudre le système d'équations aux dérivés partielles. Le plus souvent deux méthodes numériques différentes sont utilisées pour résoudre les équations aux dérivés partielles. La méthode des différences finis **MDF** et la méthode d'éléments finis **MEF** [10]. Dans notre cas nous avons utilisé la méthode des différences finis **MDF**.

IV.2.1. Méthode de discrétisation

L'épaisseur d de l'échantillon est divisée en m couches d'épaisseur Δx ($m=100$), (maillage uniforme). L'incrément de distance (profondeur) est indexé par (i) et l'incrément de temps par (j) (figure IV.2). Le champ électrique E et la densité de charges libres ρ_f pour différentes valeurs de temps (j) ont été calculés à partir du système d'équations ci-dessous (obtenu après discrétisation du système d'équations (IV-07),(IV-08) ,(IV-09)) :

$$E(i, j+1) = E(i, j) - \Delta t \cdot \left(\frac{\mu}{\epsilon_o \epsilon_r} \right) \cdot E(i, j) \cdot \rho_f(i, j) \quad (\text{IV-11})$$

$$\rho_T(i, j+1) = \frac{\Delta t \cdot \epsilon_o \epsilon_r}{\Delta x \cdot \tau_F} [E(i, j+1) - E(i-1, j+1)] + \left(1 - \Delta t \left(\frac{1}{\tau_T} + \frac{1}{\tau_F} \right) \right) \cdot \rho_T(i, j) \quad (\text{IV-12})$$

$$\rho_f(i, j+1) = \frac{\epsilon_o \epsilon_r}{\Delta x} [E(i, j+1) - E(i-1, j+1)] - \rho_T(i, j+1) \quad (\text{IV-13})$$

$E(i, j)$: représente la valeur du champ électrique à l'instant t et la position $x(t)$

$E(i, j+1)$: représente la valeur du champ électrique à l'instant $t + \Delta t$ et la position $x(t + \Delta t)$.

$\rho_F (i,j)$ et $\rho_T (i,j)$: représentent les densité de charge libre et piégées a l'instant t et la position $x(t)$.

$\rho_F (i,j+1)$ et $\rho_T (i,j+1)$: représentent les densités de charge libre et piégées a l'instant $t+\Delta t$ et la position $x(t+\Delta t)$.

Pour résoudre notre système d'équations, nous avons utilisé les conditions initiales et aux limites suivantes :

- A $t=0$, le champ électrique dans le volume de l'échantillon est uniforme et est donné par:

$$E(x,0) = \frac{V_o}{L}, \text{ pour } x \neq 0 \quad (\text{IV-14})$$

- Selon la supposition d'une injection partielle,

$$E(0,t) = \left(\frac{V_o}{L} \right) \cdot (1 - \alpha_o) \quad (\text{IV-15})$$

- Avant le temps de transit t_t , le champ électrique à l'électrode de masse est égal à:

$$E(L,t) = \frac{V_o}{L} \text{ avec } t_T = \frac{L^2}{\mu_o \cdot V_o} \quad (\text{IV-16})$$

- On considère que le film de PI est pur donc le volume de l'échantillon est complètement déchargé, on a alors :

$$\rho_T(x,0) = \rho_F(x,0) = 0 \quad \text{Pour } 0 < x \leq L \quad (\text{IV-17})$$

L'intégration de l'équation (IV-10) par la méthode de trapèze permet de calculer le potentiel $V(t)$.

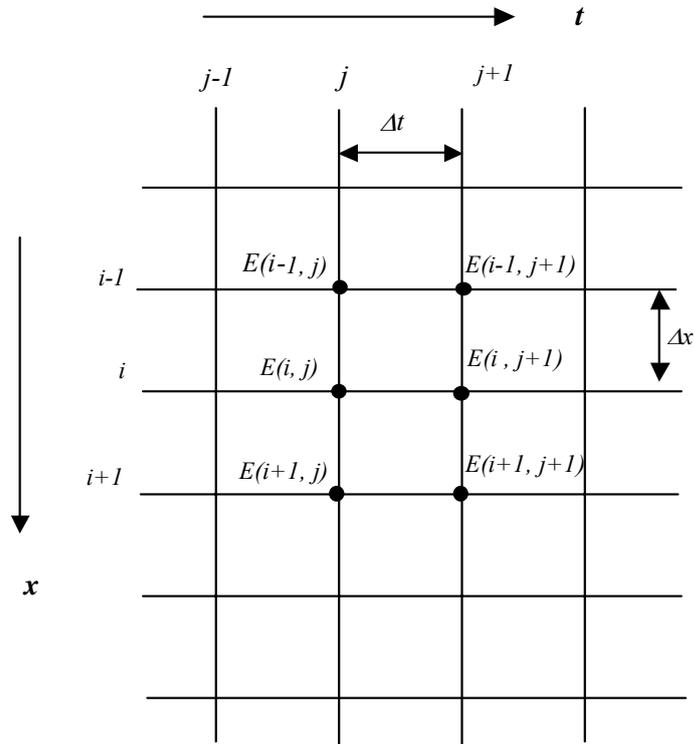


Figure IV.2 : Discrétisation de la structure étudiée

IV.3. MODÉLISATION DU DÉCLIN DE POTENTIEL MESURÉ DANS UN ENVIRONNEMENT RELATIVEMENT SEC

Les équations aux dérivées partielles ont été résolues par la méthode des différences finies et ont permis d'obtenir à tout instant, la distribution spatiale des charges libres et des charges piégées, le champ électrique local et le potentiel de surface. Les paramètres adoptés pour caractériser la cinétique du déclin de potentiel sont déterminés en ajustant les résultats numériques afin d'obtenir le meilleur accord avec l'expérience (procédure de fittage). Les résultats des mesures expérimentales et les courbes théoriques obtenues par la simulation sont représentés sur la figure IV.3. Donc, on remarque que le modèle théorique qui tient en compte l'injection partielle dépendant du champ des charges déposées et les phénomènes de piégeage et dépiégeage, permet d'obtenir un bon accord entre les résultats théoriques et expérimentaux le long du domaine de temps exploré. Les paramètres électriques adoptés pour caractériser le phénomène de transport, déterminés en ajustant les résultats numériques avec les résultats pratiques, sont reportés dans le tableau IV.1.

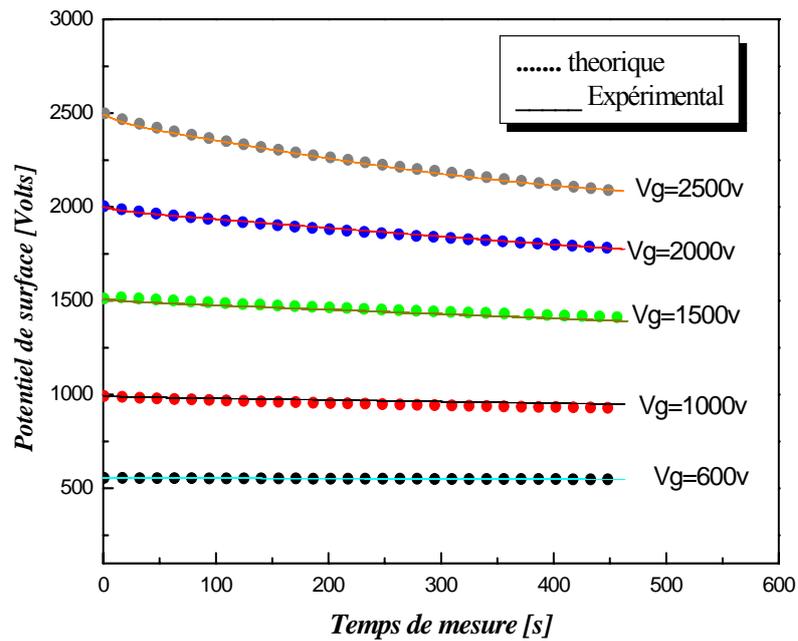


Figure IV.3 : Déclin de potentiel de surface d'un film PI chargé par décharge corona (théorique et expérimental.)

		RH = 30%			
V_0	$\alpha \times 10^{-2}$	T_f (s)	T_p (s)	$\mu \times 10^{-15}$ (m^2/Vs)	
600 Volts	11	17	61	6	
1000 Volts	16	19	59	6	
1500 Volts	17	19	59	6	
2000 Volts	18	21	58	6.5	
2500 Volts	20	23	57	7.5	

Tableau IV.1 : Evolution des paramètres du modèle de transport de charge déterminés par la procédure de fittage avec la valeur du chargement initial.

IV.3.1. Effet du niveau de chargement sur la mobilité des porteurs

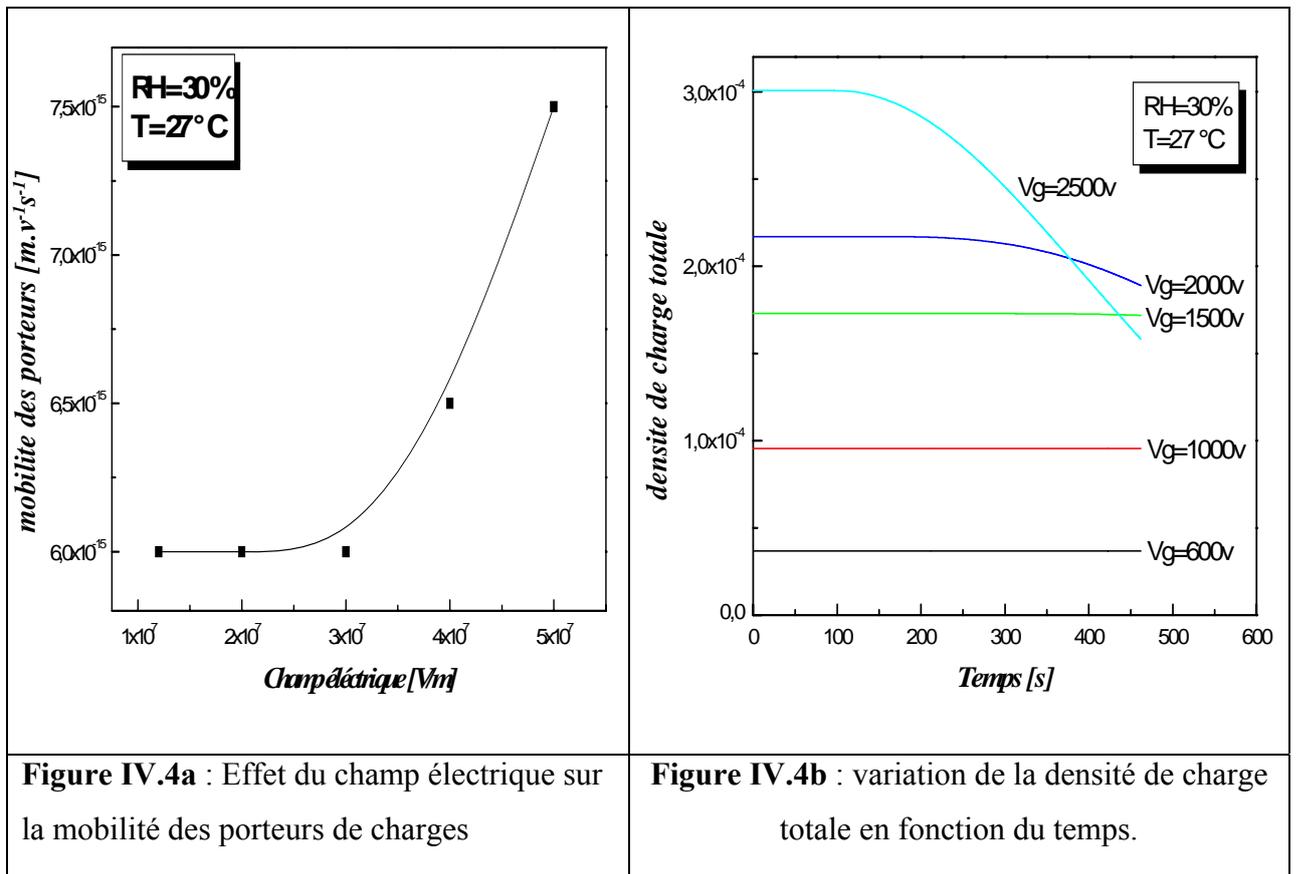
La mobilité est un paramètre majeur de conductivité électrique du film. C'est le saut entre les chaînes qui est en majorité responsable des faibles mobilités observées. Les liaisons intermoléculaires sont plus faibles (principalement dues aux forces de Van der Waal) et plus longues qu'à l'intérieur des molécules. Ainsi, les composants en petites molécules peuvent atteindre des mobilités jusqu'à deux ordres de grandeur supérieurs par rapport aux polymères. Quant à ces derniers, ils ne sont malheureusement jamais tout à fait à l'état cristallin : ce sont des mélanges de zones cristallines et amorphes [11,13].

Sur la figure (IV.4a) nous avons représenté la variation de la mobilité moyenne volumique des charges libre en fonction du champ électrique local initial (potentiel initial) enregistré dans un environnement relativement sec ($RH = 30\%$) et une température ambiante ($27\text{ }^{\circ}\text{C}$). On remarque, que la mobilité augmente de façon non linéaire avec la valeur du champ. Pour les faibles valeurs du champ, la mobilité reste presque constante, par contre, pour les valeurs du champ élevées, on observe une augmentation brutale de la mobilité. Pour les faibles niveaux de chargement initial, les porteurs n'ont pas assez d'énergie pour être libérés une fois piégés, ce qui entraîne une faible valeur de la mobilité. Cependant, pour les forts niveaux de chargement, les porteurs peuvent être facilement dépiégés, ce qui les rend quasiment libres.

Afin de mieux mettre en évidence l'effet du champ électrique local sur la mobilité des charges, nous avons tracé dans la figure (IV.4b) les variations de la charge totale, qui est la somme de la densité des charges libres et les charges piégées, en fonction du champ électrique local. Les valeurs des densités des charges libres et piégées sont issues de la procédure de simulation. Les allures présentent une constante linéarité pour les faibles niveaux de chargement (tension de grille de 600 et 1000 V). Cette observation indique que les charges déposées sur la face libre du film de polyimide n'ont pas assez d'énergie pour arriver à la face arrière reliée à la masse due à la faible valeur de la mobilité. Dans ce cas, la charge totale reste pratiquement constante pendant le temps de l'expérience exploré (600 s). Par contre pour les forts niveaux d'injection (tension de grille de 2000 et 2500 V), on observe une constante variation suivie d'une décroissance de la charge totale après un certain temps t_i appelé temps de transit. Ce dernier représente le temps pour lequel le front montant (leading edge) des charges libres peut atteindre la face reliée à la masse et est donné par l'équation suivante [09,06] :

$$t_T = \frac{L^2}{\mu_o \cdot V_o}$$

Donc on peut conclure que pour des faibles injections le temps de transit est supérieur au temps de l'expérience, c'est pour cette raison qu'on a pas observé un déclin de potentiel. Pour les forts niveaux d'injection le temps de transit est inférieur au temps exploré de l'expérience. Après le temps de transit les charges commencent à quitter l'échantillon à travers la face reliée à la masse, ce qui explique la rapidité du déclin enregistré. Une bonne corrélation existe entre la variation de la charge totale avec le temps et la variation de la mobilité en fonction du champ électrique.



IV.3.2. Effet du champ sur la proportion de charges injectées dans le volume

Lors de la simulation théorique, Nous avons supposé qu'après la décharge couronne, une proportion α des charges déposées est instantanément injectée dans le volume de l'échantillon, par contre, la proportion $(1 - \alpha)$ reste profondément piégée à la surface. Sur la figure (IV.5) nous avons reporté les valeurs de α issues de la procédure de fittage des déclinés de potentiel théoriques avec les déclinés de potentiel pratiques (figure IV.3). On remarque que la quantité des charges injectées augmente avec la tension de la grille appliquée. L'allure montre une variation presque linéaire avec le champ électrique initial. Par exemple pour une tension de grille de 600, 1000, 2000 et 2500 V, la valeur de α est 0.11, 0.16, 0.18 et 0.20 respectivement. L'augmentation de la quantité des charges injectées est due à l'effet du champ électrique sur l'énergie des porteurs de charges.

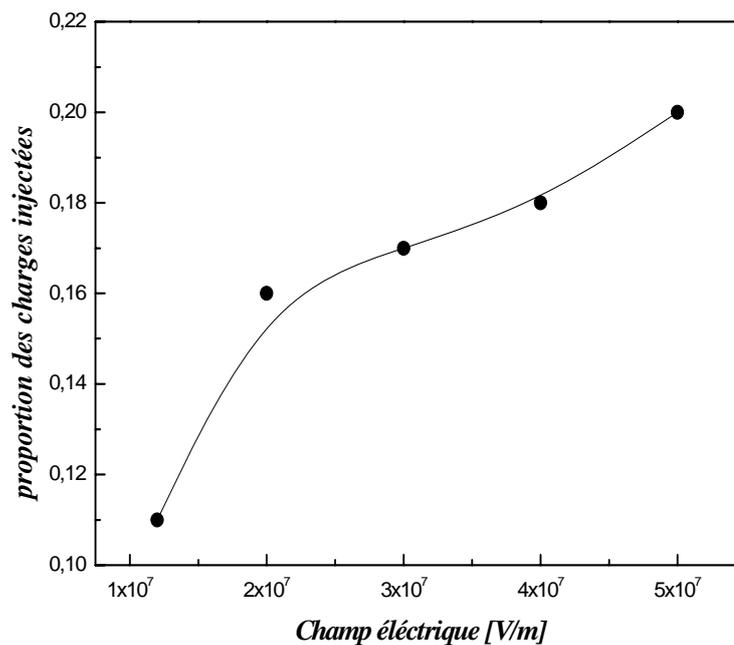


Figure IV.5 : variation de la proportion α en fonction du champ électrique

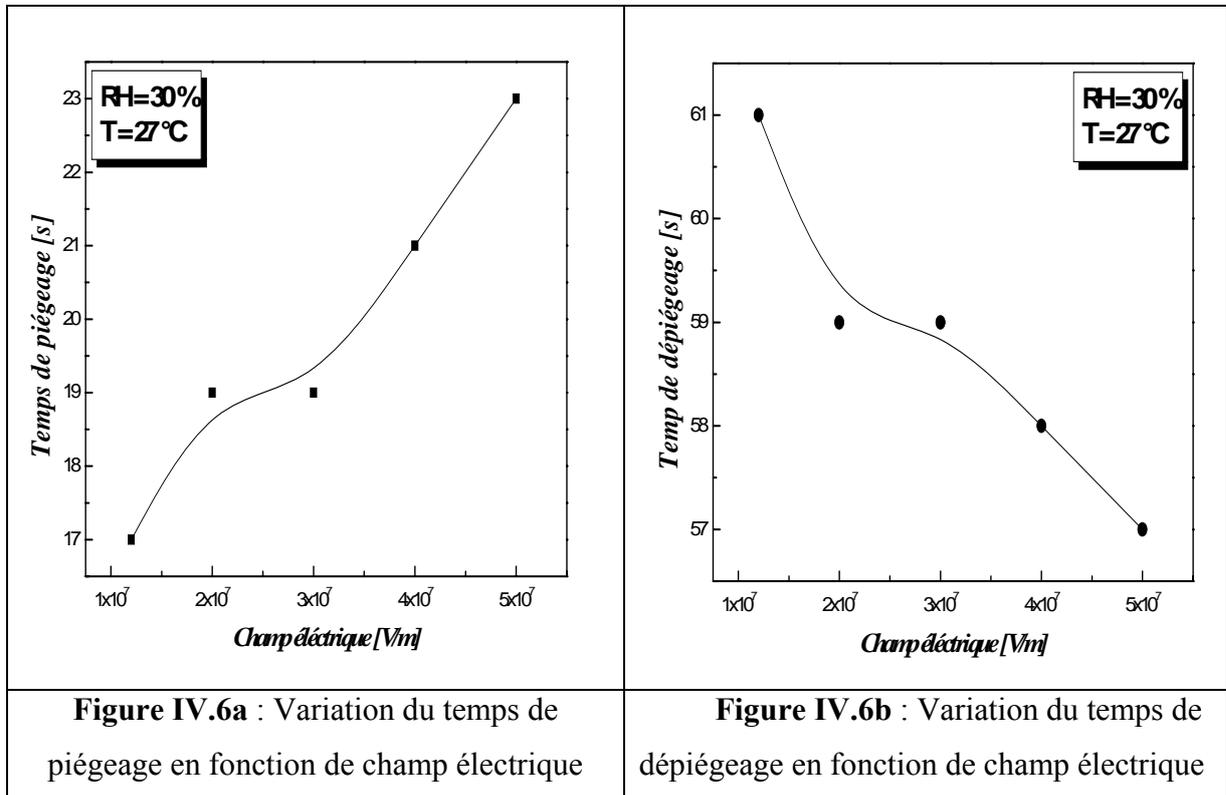
IV.3.3. Effet de champs sur les paramètres caractérisant les phénomènes de piégeage et dépiégeage

Les défauts dans l'isolant peuvent être de différentes natures : ponctuels (lacunes, interstitiels), linéaires (dislocations) ou surfaciques (interfaces : joints de grains, entre différentes phases). Tous ces défauts entraînent une variation de la conductivité du milieu et constituent donc des sites possibles pour le piégeage des charges. Selon leur nature, ces pièges sont plus ou moins profonds. On peut ainsi les classer en deux catégories : les pièges peu profonds (autour de 0,1 eV) dans lesquels les électrons ne sont que momentanément localisés (auto piégeage, défauts étendus...) et les pièges profonds (> 1 eV) dans lesquels les électrons sont durablement localisés (défauts ponctuels, impuretés...). Les charges piégées peuvent, sous l'action combinée de la température et du champ électrique interne, être dépiégées. Ce mécanisme appelé effet Poole-Frenkel [12, 14,15]. Les défauts dans la structure du film polyimide engendrent la présence des pièges profonds à la surface et peu profonds au volume qui influent sur les mécanismes de transport des charges. Le temps moyen libre de la charge T_f (temps de vol entre pièges) et le temps moyen de résidence de la charge dans le piège T_p sont deux paramètres caractérisant les phénomènes de piégeage et dépiégeage puisque ils sont liés directement avec la densité uniforme des pièges N_t et le niveau énergétique du piège E_t par l'équation (IV-05) et (IV-06) respectivement.

Les figures (IV.6a) et (IV.6b) représentent les variations du temps de piégeage T_f et le temps dépiégeage T_p en fonction du champ électrique initial, respectivement. Les valeurs de T_f et de T_p sont issues de la procédure de fittage des déclins de potentiel théoriques avec les déclins de potentiel pratiques (figure IV.3). La variation du temps de piégeage T_f est proportionnelle avec la variation du champ électrique, par contre, la variation du temps de dépiégeage T_p est inversement proportionnelle avec la variation du champ électrique. Les deux allures sont pratiquement symétriques. Le temps de piégeage augmente avec l'augmentation de la valeur du champ électrique, cependant, le temps de dépiégeage décroît avec l'augmentation de la valeur du champ électrique. Par la comparaison des allures de T_f et T_p on peut conclure que les résultats obtenus sur les variations de ces paramètres sont en bon accord avec les variations de déclin de potentiel enregistrés.

Pour les faibles valeurs du champ électrique ($V_0=1000$ V), le temps moyen libre T_f correspond à une concentration des pièges profonds approximativement de $N_t= 4.38. 10^{23} \text{ m}^{-3}$

et le temps de capture T_p correspond à une énergie de piège profond $E_t=82.442.10^{-2}$, valeur suffisante pour capturer les charges à la surface, ce qui explique la stabilité du déclin de potentiel. Par contre, à des fortes valeurs de champ ($V_0=2500$ V), on trouve l'inverse, la densité de piège d'environ $N_t=4,6. 10^{23} \text{ m}^{-3}$ et une énergie de piège de l'ordre de $E_t= 82.3.10^{-2}$.



IV.4. ÉTUDE DE L'EFFET DE L'HUMIDITÉ RELATIVE (RH) SUR LA DÉCHARGE ÉLECTROSTATIQUE DANS UN FILM DE PLYIMIDE (PI)

Les familles de déclin de potentiel mesurées dans différentes humidités relatives pour différentes tensions de grille ont été également théoriquement simulées. La simulation a été basée sur les mêmes équations de transport utilisées pour la modélisation du déclin de potentiel mesuré dans un environnement relativement sec. Dans ce cas l'influence de la présence de molécules d'eau sur la cinétique du déclin de potentiel est mise en évidence par les variations des paramètres contrôlant le mécanisme de transport (α , μ , T_f et T_p) dans le film de polyimide, avec l'augmentation de l'humidité relative dans l'enceinte de mesure.

IV.4.1. Modélisation du déclin de potentiel de surface pour différent RH

Dans les figures IV.7a-b sont représentées les comparaisons entre les courbes théorique et pratique du déclin de potentiel obtenus pour différents taux d'humidité relative et des tensions de grille de 1000, 1500, 2000 et 2500V respectivement. Pour les tensions de grille élevées (2000 et 2500 V), un bon accord entre les courbes pratiques et simulées a été obtenu. Ceci est probablement dû aux grands écarts entre les déclin enregistrés pour différents taux de RH. Dans un environnement hautement humide, la concentration des protons H^+ engendrée par la dissociation de la molécule d'eau augmente, comme l'ion H^+ est très petit, sa mobilité sera plus grande que d'autres ions mobiles, donc, H^+ peut contribuer bien à la dépendance du taux d'humidité relative sur le déclin de potentiel. Par contre, pour les faibles tensions de grille (1000 V et 2000 V), l'effet de RH sur le déclin de potentiel est faible, un bon accord entre les courbes pratiques et théoriques a été difficile à obtenir. Les paramètres électriques adoptés pour caractériser le phénomène de transport, déterminés en ajustant les résultats numériques avec les résultats pratiques, sont résumés dans le tableau IV.2.

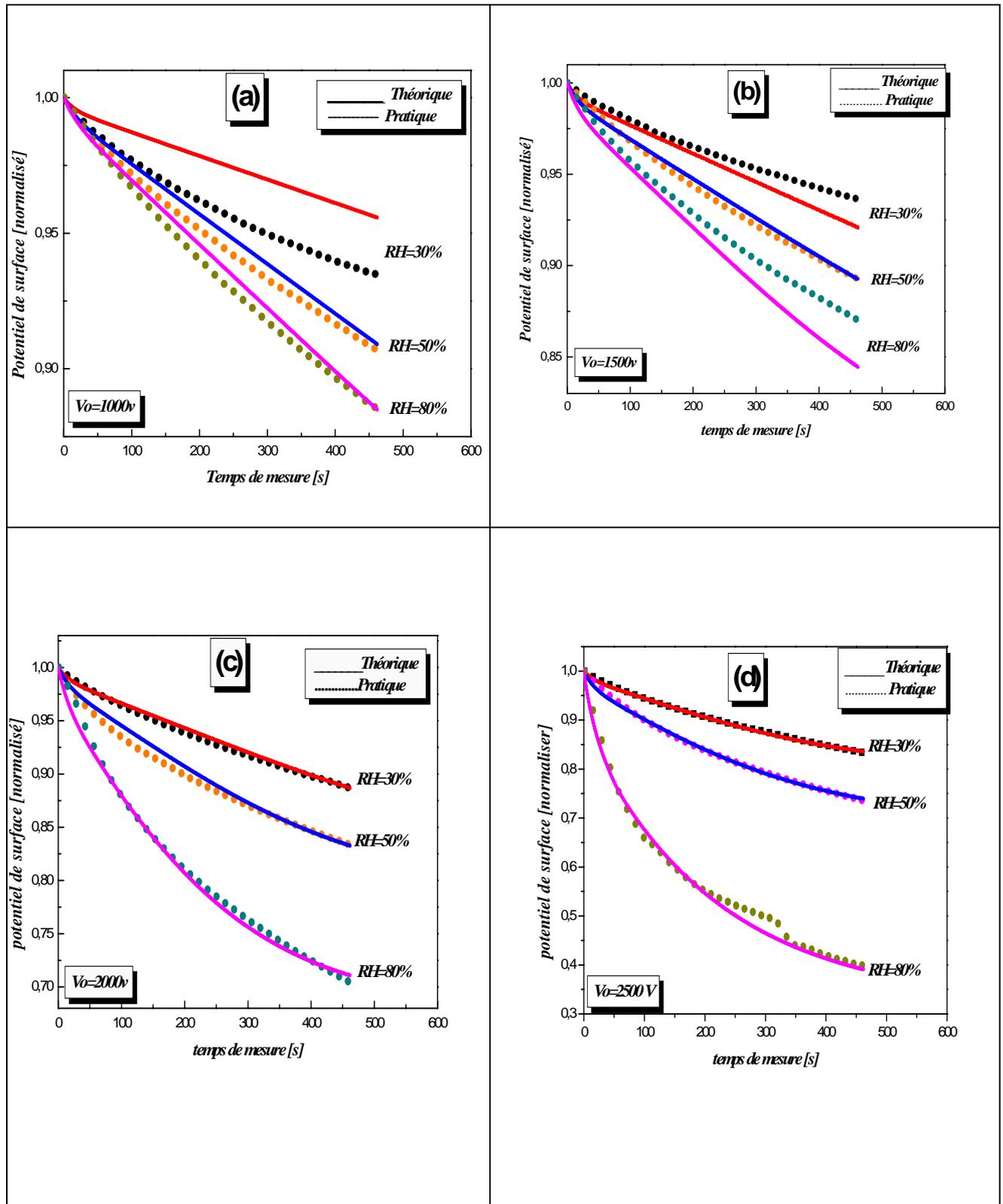


Figure IV.7 : comparaison entre les courbes théorique et pratique du déclin de potentiel pour différent RH et des tensions de grille de : (a) 1000V, (b) 1500V, (c) 2000V et (d) 2500V.

RH	30%				50%				80%			
	α $\times 10^{-2}$	T_f (s)	T_p (s)	μ (m ² /vs) $\times 10^{-15}$	α $\times 10^{-2}$	T_f (s)	T_p (s)	μ (m ² /vs) $\times 10^{-15}$	α $\times 10^{-2}$	T_f (s)	T_p (s)	μ (m ² /vs) $\times 10^{-15}$
600V	11	17	61	6	13	30	52	7	14	35	48	7.5
1000V	16	19	59	6	20	30	50	7	21	33	47	8
1500V	17	19	59	6	20	22	58	7	23	24	56	8.5
2000V	18	21	58	6.5	21	24	55	8.5	32	25	54	13
2500V	20	23	57	7.5	30	25	54	9	62	28	52	20

Tableau IV.2 : Evolution des paramètres du modèle de transport de charge déterminés par la procédure de fittage avec la tension de grille et le taux de RH.

IV.4.2. Effet de RH sur la mobilité des charges

L'étude de la cinétique du déclin du potentiel de surface $V(t)$ est un outil puissant pour l'investigation des procédés de transport de porteurs de charges. Cette méthode permet une détermination convenable de la mobilité de porteurs de charges et des paramètres de piège [16,17]. L'augmentation de la conductivité du film de polyimide avec l'humidité relative peut être expliquée par l'augmentation de la mobilité de porteurs libres. L'évolution de la mobilité des charges libres avec le taux d'humidité relative pour différentes tension de grille est représentée sur la figure IV.8. Les résultats montrent que la mobilité augmente avec l'augmentation du taux de RH. Pour les faibles tensions de grille, la mobilité augmente légèrement avec le taux de RH, la valeur de cette dernière passe de $6 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2/\text{vs}$ à $7.5 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2/\text{vs}$ lorsque le taux de RH augmente de 30 % à 80 %. Cette faible augmentation est due au faible taux de dissociation de la molécule d'eau dû à la faible valeur du champ électrique local. Par conséquent, la concentration de proton H^+ issue de la dissociation de l'eau est faible, ce qui entraîne une faible valeur de la mobilité. Cependant, pour les tensions de grille élevées, l'augmentation de la valeur de la mobilité avec le taux de RH est plus prononcée, la valeur de cette dernière passe de $7.5 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2/\text{vs}$ à $20 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2/\text{vs}$ lorsque le taux de RH augmente de

30 % à 80 %. On associe cette augmentation au fort taux de dissociation de la molécule d'eau sous l'effet du champ électrique locale élevé.

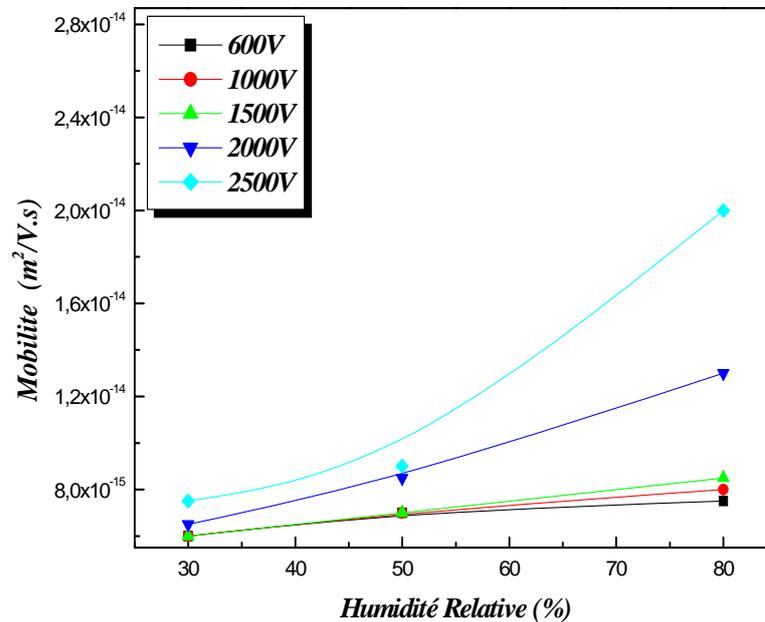


Figure IV.8 : Variation de la mobilité en fonction de RH pour différent tension de grille

Pour mieux mettre en évidence l'effet de l'humidité relative sur la mobilité des charges, nous avons tracé dans les figures IV.8a et IV.8b les variations de la charge totale, qui est la somme de la densité des charges libres et les charges piégés, en fonction du temps et différents taux de RH, pour une tension de grille de 2000 V et 2500 V respectivement. En premier lieu, on voit clairement que lorsque le taux de RH augmente la densité de charges totale augmente. Cela veut dire que l'adsorption de la valeur d'eau produit un excès de charge dans le film de polyimide. En plus, l'évolution de la charge totale avec le temps montre une constante variation suivie d'une décroissance de la charge totale après le temps de transit t_i . Ce dernier décroît significativement avec l'augmentation du nombre de molécules d'eau adsorbé. Donc, on peut dire qu'avec le phénomène d'adsorption de la vapeur d'eau, les charges déposées par effet corona arrivent rapidement à la face arrière de l'échantillon avant d'être écoulées à travers la masse.

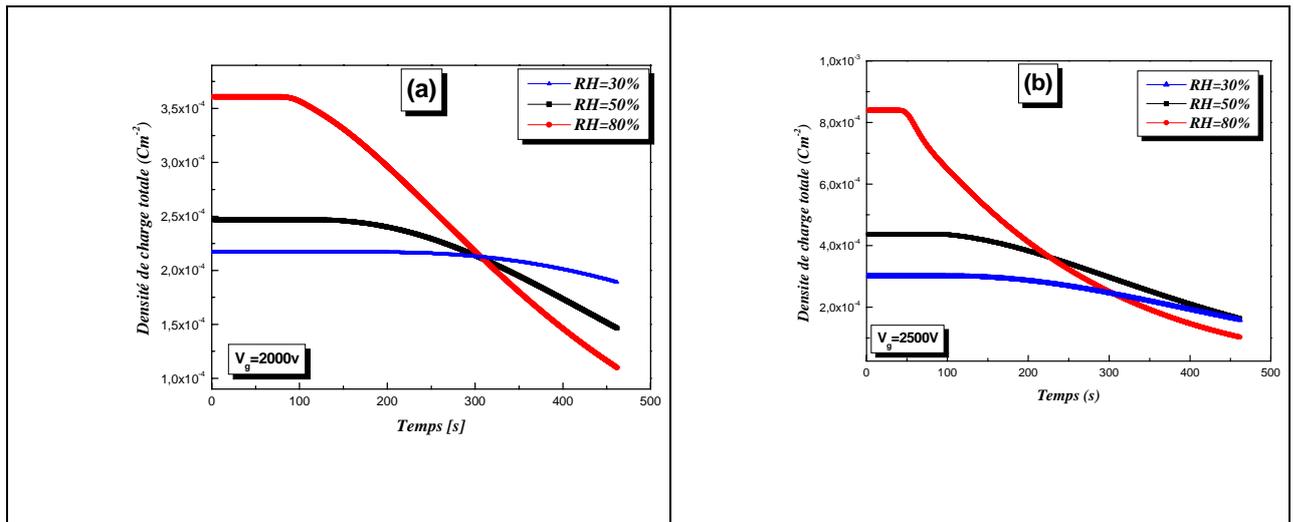


Figure IV.8 : Variation de la charge totale en fonction du temps pour différent HR et une tension de grille de (a) 2000 V et (b) 2500 V.

IV.4.3 Effet de l'humidité relative HR sur la proportion des charges injectées (α)

La figure IV.9 présente les variations de la proportion des charges injectées α dans le volume de l'échantillon après la fin de la décharge couronne. Les évolutions montrent que la proportion α augmente avec l'augmentation du taux de RH. Pour les faibles tensions de grille, α augmente lentement avec le taux de RH, la valeur de cette dernière passe de $11 \cdot 10^{-2}$ à $14 \cdot 10^{-2}$ lorsque le taux de RH augmente de 30 % à 80 % pour une tension de grille de 600 V. Cependant, pour les tensions de grille élevées, l'augmentation de la valeur de la mobilité avec le taux de RH est plus prononcée, pour une tension de grille de 2500 V, la valeur α augmente de $20 \cdot 10^{-2}$ à $60 \cdot 10^{-2}$ lorsque le taux de RH augmente de 30 % à 80 %. Cette observation montre que l'injection des charges dans le volume de l'échantillon est accentuée par l'augmentation du taux de RH. Cela est dû à l'excès de charge provoqué par la dissociation de l'eau adsorbée.

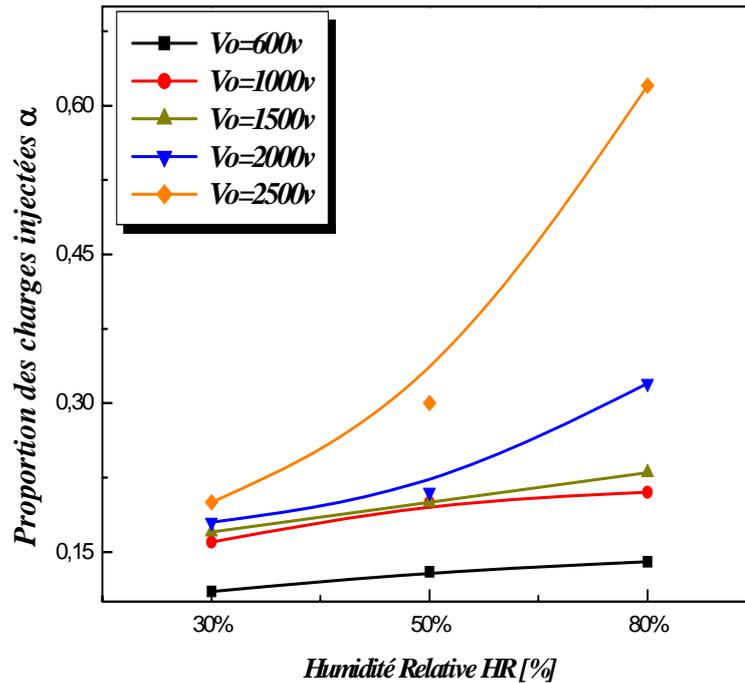


Figure IV.9 : variation a proportion des charges injectées en fonction de RH pour différent V_0

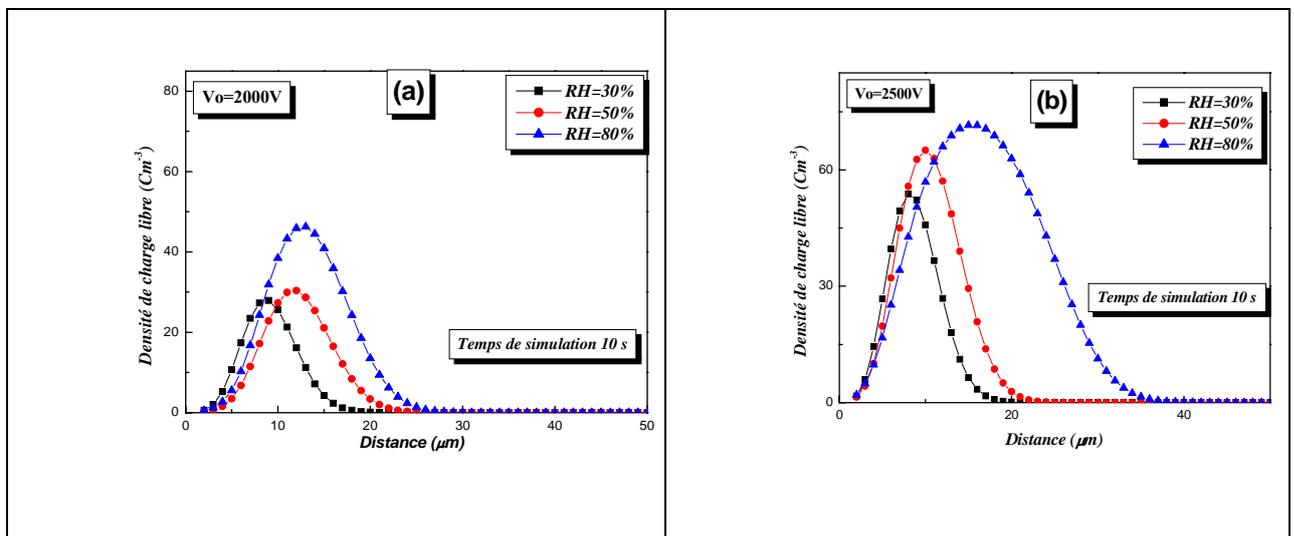


Figure IV.10 : distribution de la densité des charges injectées dans le volume pour différent RH et une tension de grille de (a) 2000 V et (b) 2500 V.

Dans les figures IV.10a et IV.10b sont représentées la distribution des charges injectées dans le volume de l'échantillon pour différent taux de RH et une tension de grille de 2000 V et 2500 V respectivement. Les données ont été obtenues par simulation et pendant uniquement une période de 10 s. Les charges injectées dans le volume de l'échantillon sont supposées quasi

libres. Par comparaison des distributions des charges libres obtenues pour différents taux de RH et une même période de simulation, on remarque tout d'abord que pour la même tension de grille la densité des charges libres augmente avec le taux de l'humidité relative. En plus, on remarque également que la distance parcourue par le front montant des charges libres augmente avec le taux de RH. La première observation signifie que la présence de la vapeur d'eau produit un excès de charges libres, tandis que la deuxième observation montre bien la croissance de la mobilité avec l'adsorption de molécules d'eau. En comparant la figure IV.10a avec la figure IV.10b, on voit clairement que l'effet de la présence de l'humidité est plus prononcé lorsque la tension de grille augmente.

IV4.4. Effet de l'humidité relative RH sur le temps de piégeage et dépiégeage

Sur les figures IV.11a et IV.11b les variations des paramètres caractérisant les phénomènes de conduction par saut entre les états localisés dans le volume de l'échantillon qui sont le temps de piégeage et de dépiégeage. Ces paramètres influent directement sur la mobilité des porteurs de charge. On remarque une croissance du temps de piégeage et décroissance du temps de dépiégeage avec l'augmentation du taux d'humidité relative. Donc le temps moyen libre de parcours augmente et les charges seront facilement libérées après capture, ce qui entraîne une augmentation de la densité des charges libres et l'augmentation de la mobilité.

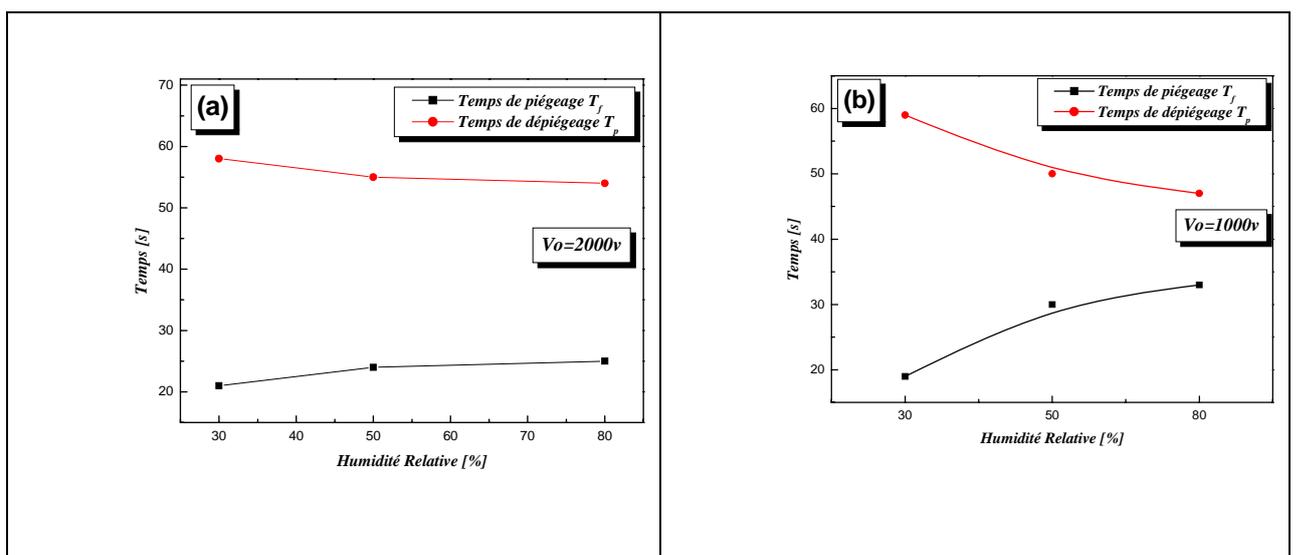


Figure IV.11 : Variation du temps de piégeage et de dépiégeage avec le taux de HR pour une tension de grill de (a) 2000 V et (b) 2500 V.

IV.5. CONCLUSION

Les résultats expérimentaux présentés dans le chapitre précédent ont été théoriquement simulés. Les paramètres contrôlant la cinétique du déclin de potentiel ont été estimés.

Dans un environnement relativement sec, la modélisation a montré que le déclin de potentiel est majoritairement influencé par le niveau de chargement initial. Les données issues de la simulation montrent que la fraction des charges injectées et la mobilité augmente avec l'augmentation de la tension de grille.

En présence de la vapeur d'eau, la modélisation théorique du déclin de potentiel a révélé les remarques suivantes :

- La décharge électrostatique dans le film de polyimide augmente avec l'augmentation du taux d'humidité relative et l'augmentation était plus accentuée lorsque le niveau de chargement initial est élevé.

- La valeur de la mobilité croît avec la concentration des molécules d'eau adsorbées. L'augmentation est prononcée pour les tensions de grille élevées.

- La dissociation de la molécule d'eau par le champ électrique local produit un excès de charge.

- L'augmentation du temps de piégeage et la diminution du temps de dépiégeage avec le taux de HR, influent directement sur la mobilité des charges libres.

Références du chapitre IV

- [01] G. Teyssedre and C. Laurent, "*Charge transport modeling in insulating polymers: From molecular to macroscopic scale*", IEEE Trans. Electr. Insul., Vol.12, pp. 857-875, (2005).
- [02] G.M. Sessler, "*Models of charge Transport in electron-beam irradiated insulators*", IEEE Trans. Electr. Insul., Vol.11, P. 192-212, (2004).
- [03] A.BELLEL, "*Traitement de surface de polymères par décharge couronne et plasma*", Thèse de doctorat, Université Mentouri, Constantine (2004).
- [04] C. Zhong, Y. Jiang, F. Guo, P. Liu, W. Wu, J. Liao, "*Effect of Humidity on Transport Mechanism in Ag/7,7,8,8-Tetracyanoquinodimethane Bilayer Films*" Japanese Journal of Applied Physics Vol. 45, No. 4A, P. 2722–2725, (2006)
- [05] H. Von Berlepsch, "*Interpretation of surface potential kinetics in HDPE by a trapping model*", J. Phys. D: Appl. Phys. 18, P.1155-1170, (1985).
- [06] R. Coelho, L. Levy, D. Sarraïl, "*Charge decay measurements and injection in insulators*" J. Phy. D: Appl. Phys. 22, P. 1406-1409, (1989).
- [07] T.J.Sonnonstine and M.M. Perlman "*Surface-potential decay in insulators with field-dependent mobility and injection efficiency*", journal of applied physics, vol. 46, n°. 9, P.3975-3981, (1975).
- [08] P. W. Chdleigh, "*Charge transport through a polymer foil*", journal of applied physics, vol. 48, n°. 11, P. 4591-4596, (1977).
- [09] S. Sahli, A. Bellel, Z. Zairi, A. Kahlouche, Y. Segui, "*Measure and analysis of potential decay in polypropylene films after negative corona charge deposition*", Journal of Electrostatics, P. 1-10, (2002)
- [10] Bassem KHADDOUR, "*Modélisation du champ électrique modifié par la charge d'espace injectée*", Thèse de doctorat de l'INPG (Institut National Polytechnique de Grenoble), (2006).
- [11] Mohamed BEN KHALIFA, "*Etude du transport et ingénierie de bandes dans les diodes organiques électroluminescentes à hétérostructures*", Thèse de doctorat de l'Ecole Centrale de Lyon, (2004)
- [12] E. Motyl, B. Łowkisfichier, "*Effect of Air Humidity on Charge Decay and Lifetime of PP Electret Nonwovens* FIBRES & TEXTILES in Eastern Europe, Vol. 14, n°. 5 (59), P.39-42, (2006)

- [13] E .Albert, "*Surface resistivity of uncoated insulators*", Journal of Electrostatics, vol. 63, P. 203–222, (2005).
- [14] Guan-Jun Zhang, Kai Yang, Ming Dong, Wen-Bin Zhao, Zhang Yan, "*Surface electroluminescence phenomena correlated with trapping parameters of insulating polymers*", Applied Surface Science, vol. 254, P. 1450–1455, (2007)
- [15] Matthieu TOUZIN, "*Transport de charges dans les alumines polycristallines : application a l'optimisation de la rigidité dielectrique*", These de doctorat, Ecole Nationale supérieure des Mines de Saint-Étienne et de l'Université Jean Monnet N° d'ordre : 384 SGM , (2005).
- [16] H. von Berlepsch, "*Interpretation of surface potential kinetics in HDPE by a trapping model* ", j.phys, D, apple, vol.18, P. 1155-1170, (1985).
- [17] E. Nemetha, V. Albrechtb, G.Schuberta, F. Simonb, "*Polymer tribo-electric charging: dependence on thermodynamic surface properties and relative humidity*", Journal of Electrostatics, vol. 58, P. 3–16, (2003).

CONCLUSION GÉNÉRALE

Conclusion générale

Le suivi du déclin de potentiel avec le temps a montré que la décharge électrostatique dans un environnement relativement sec est beaucoup influencé par le niveau de chargement initiale. La chute de potentiel de surface augment significativement avec la tension initiale Le profile du potentiel de surface relevé pendant différent période de temps indique l'absence de l'écoulement latérale des charges déposées et l'évolution temporelle du potentiel de surface est fortement influencée par la contribution des phénomènes liés au volume du matériau. Dans un environnement plus humide, l'évolution du potentiel de surface en fonction du temps a montré que la présence de la vapeur d'eau augmente la décharge électrostatique dans les films de polyimide et cette augmentation était plus accentuée lorsque le niveau de chargement était plus fort. L'augmentation du taux de décroissance du potentiel de surface a été attribuée à la dissociation de molécules d'eau par le champ électrique local crée par les charges déposées. La dissociation de molécules d'eau engendre une forte concentration de protons qui peuvent influencer la conductivité du film de polyimide. L'étude du profile de potentiel de surface en présence de moyen et fort taux d'humidité relative a révélé également l'absence de conduction surfacique. Donc, même en présence de forte concentration d'eau, le déclin de potentiel est majoritairement lié aux phénomènes volumiques de l'échantillon.

Les résultats expérimentaux ont été théoriquement simulés. Les paramètres contrôlant la cinétique du déclin de potentiel ont été estimés. Dans un environnement relativement sec, la modélisation a montré que le déclin de potentiel est majoritairement influencé par le niveau de chargement initial. Les données issues de la simulation montrent que la fraction des charges injectées et la mobilité augmente avec l'augmentation de la tension de grille.

En présence de la vapeur d'eau, la modélisation théorique du déclin de potentiel a révélé les remarques suivantes :

- La décharge électrostatique dans le film de polyimide augmente avec l'augmentation du taux d'humidité relative et l'augmentation était plus accentuée lorsque le niveau de chargement initial est élevé.
- La valeur de la mobilité croit avec la concentration des molécules d'eau adsorbées. L'augmentation est prononcée pour les tensions de grille élevées.

- La dissociation de la molécule d'eau par le champ électrique local produit un excès de charge.
- L'augmentation du temps de piégeage et la diminution du temps de dépiégeage avec le taux de HR, influent directement sur la mobilité des charges libres.

Comme perspective, il serait très intéressants d'étudier le déclin de potentiel en fonction de la période d'immersion de l'échantillon dans l'eau et de faire une analyse structurale sur les substrats immersives.

Abstract

The polyimide present a significant behaviour of water absorption compared to other polymers because of their imide groups, which induce in certain applications of insulation a non desirable effects. Indeed, the relative humidity can influence in a considerable way the electric properties of these materials. During this work, our interest is concerned with the study of the influence of the relative humidity on the evolution of the electric properties of polyimide film charged initially with a potential V_0 . This study is made through the measurement of the surface potential decay and the surface potential profile. During this work, the polyimide films are charged by corona system under a controlled atmosphere. The evolution of the surface potential decay with time showed that the electrostatic discharge in low relative humidity (80%) is more influenced by the initial level of chagement. The fall of surface potential increase significantly with the initial tension. Profiles obtained for different periods show that the flow of the deposited charges and the temporal evolution of the surface potential is controlled by the contribution of the phenomena related to the bulk of material.

However, in more humid environment, the evolutions of the surface potential showed that the presence of the water vapour increases the electrostatic discharge in polyimide films and this increase was accentuated for the high level of charging. The surface potential decay was faster for films charged under high humidity (80%) than other films charged under low humidity (30%).

Finally, our results were simulated with a mathematical model which shows that there is a good agreement between the theoretical and experimental results. The use of this model enabled us to determine the effect of RH on the variation of the various parameters controlling the surface potential decay such as: the capture time, the free time, the mobility and the rate of injection.

ملخص:

تتميز البوليميدات بقابلية لامتنصاص الماء اكبر من غيرها من البوليميرات و هذا لاحتوائها على مجموعات وظيفية في من أيميد في تركيبها الكيميائي مما يؤثر على خصائص العزل لهذه المواد .

من خلال دراسات المختلفة حول آليات النقل الكهربائي عبر العوازل خاصة منها "البوليمير" يندرج هذا العمل في إطار دراسة تأثير عامل الرطوبة على آليات النقل الكهربائي عبر شرائح من "البوليميد" و ذلك من خلال تتبع تغيرات الكمون لشريحة مشحونة بتفريغ "كورونا" موضوعة تحت تأثير نسب مختلفة من الرطوبة (30% إلى 80%). كما يعرض هذا العمل تأثير الرطوبة على التوزيع الشحني في مركز و خارج منطقة التفريغ على سطح الشريحة حيث تم ملاحظة أن الشحنات الكهربائية متمركزة في منطقة التفريغ مما يدل أن النقالية تمت عبر حجم الشريحة.

بعد عملية التفريغ تنقل شرائح البوليميد بسرعة تحت ملنقط الإشارات من اجل قياس تغيرات الكمون السطحي. النتائج المحصل عليها تمت تحت شروط درجات حرارة معتدلة و تغيرات في نسب الرطوبة (30%, 80%)

باستعمال دارة مفتوحة و الاعتماد على نموذج لدراسة تغيرات الكمون السطحي حيث بينت النتائج المحصل عليها مع أخرى تجريبية وجود منحنى متناقص في الكمون يتزايد هذا التناقص كلما ارتفعت نسبة الرطوبة.

من خلال هذا العمل قمنا باستعراض تغيرات مختلف الظواهر الفيزيائية التي لها تأثير مباشر على تغيرات الكمون السطحي من خلال عرض تغيرات هذه الظواهر بدلالة تغير في نسب الرطوبة مع شرح تأثير الرطوبة المباشر على هذه الظواهر.