

ECOLE NATIONALE POLYTECHNIQUE Laboratoire de Recherche en Electrotechnique

> Laboratoire de Haute Tension Département de Génie Electrique



THESE

Présenté au laboratoire de Recherche en Electrotechnique (LRE) Laboratoire de Haute Tension

Docteur

En Génie Electrique Option Haute tension

Présentée par:

ROGTI Fatiha

INGENIEUR, MAGISTER EN ELECTROTECHNIQUE DE L'UNIVERSITE DE LAGHOUAT

Thème Rôle des interfaces métal / diélectrique et diélectrique / diélectrique dans la formation des charge d'espace dans les polymères sous contrainte continue

Soutenue publiquement le 07/07/

07/07/ 2009

devant le jury composé de:

Président : Ahmed Boubakeur, Prof, ENP

Rapporteurs : Abdelouahab MEKHALDI, Prof., ENP

Christian LAURENT, Prof., Université Paul Sabatier, Toulouse, France.

Examinateurs : Mme Saidi –AMROUN Nadia, Prof., USTHB Mr BENREKAA Nacer, Maître de Conférences, USTHB Mr MOULAI Hocine, Maître de Conférences, USTHB Mr TEGUAR Madjid, Maître de Conférences, ENP

REMECEMENTS

Ce travail a été effectué au Laboratoire de Plasma et Conversion d'énergie de Toulouse sous la direction scientifique de Monsieur Christian LAURENT, Directeur de recherche au CNRS, et Monsieur Abdelouahab MEKHALDI Professeur à ENP Alger.

Je tiens ici à saluer les membres, permanents et non permanents, de cette équipe d'accueil plus que conviviale : Christian Laurent, Gilber Teyssède, Laurent Boudou, Vergine, Sévrine, et Bounoi,

Je tiens également à remercier :

Monsieur Ahmed Boubakeur, Professeur à ENP pour avoir accepté de venir rapporter ce travail, et d'avoir présidé ce jury.

Mme Saidi –AMROUN Nadia, Prof., USTHB pour m'avoir fait l'honneur de participer à ce jury. Monsieur TEGUAR Madjid, Maître de Conférences, ENP pour m'avoir fait l'honneur de participer à ce jury. Monsieur MOULAI Hocine, Maître de Conférences, USTHB pour m'avoir fait l'honneur de participer à ce jury. Monsieur BENREKAA Nacer, Maître de Conférences, USTHB pour m'avoir fait l'honneur de participer à ce jury.

Enfin je remercie tous les membres du laboratoire qui m'ont permis d'achever ce travail par la patience qu'ils ont eu à mon égard et le soutien moral qu'il ont pu m'apporter, ainsi que Monsieur Laurent Christian, Directeur du Laplace, pour m'avoir accepté dans le laboratoire.

Résumé	

CHAPITRE I - TRANSPORT DE CHARGE DANS LES POLYMERES

1.LES CABLES A ISOLANT SYNTHETIQUE4

1.1.Introduction	4
1.2.L'isolant synthétique : un polymère	5
I.2.2 Structure physique d'un polymère	6
I.3 Les polyéthylènes	7
I.4 Structure des bandes d'énergie	8
I.4.1 Notion de bandes d'énergie	8
I.4.2 Notion de piège	9
I.4.3 Le piégeage des charges	9
I.5 Phénomène donnant lieu à un courant dans le circuit	10
I.5.1 Phénomène ionique	10
I.5.2 Phénomène dipolaire	10
I.5.3 Phénomène électronique	12
I.5.3.1 Mécanisme contrôlé par l'interface	12
I.5.3.2 Mécanismes contrôlés par le volume du polymère	14
I.6 Les charges d'espace	18
I.6.1 Origine des charges d'espaces	18
I.6.2 Effet des charges d'espace sur le champ appliqué	19
I.6.3 Polarisation interfaciale ou de Maxwell Wagner	21
I.6.4 Effet de l'interface de contact selon la théorie de Maxwell- Wagner	24
I.6.4.1 Considérations sur les interfaces diélectriques	24
I.6.4.2 Le modèle de trois couches pour une interface diélectrique	25
I.6.4.3 Evaluation de la charge interfaciale	27
I.6.4.4 La validité des hypothèses	28
I.6.4.5 Intérêt de la mesure de la charge d'espace	29

CHAPITRE II - MATERIAUX ET DISPOSITIF EXPERIMENTAL

II.	1 Introduction	.30
II.2	2Choix des polymères	.30
II.2	2.1 Polymères utilisés	.30
a.	Polyéthylène réticulé chimiquement XLPE	.30
b.	Polyéthylène basse densité (LDPE) et Copolymère d'éthylène propylène Fluoré (FEP)	.31

II.2.2. Préparation des échantillons	31
II.3.Les mesures réalisées	32
II.3.1. La méthode électroacoustique pulsée	32
II.3.2 Le dispositif électro-acoustique pulsé	37
II.3.3 Interprétations de signal de la charge d'espace dans les différentes combinaisons diélectriques	40
II.4 Procédure de calibration	44
II.5 Les conditions électriques et thermiques	48

CHAPITRE III - COMPORTEMENT DES INTERFACES PHYSIQUES

III.1 1Introduction
III.2 Matériaux et dispositifs expérimentaux
III.2.1 Caractéristique des échantillons
2 L'échantillon utilisé avec différents matériaux d'électrodes
III.3 Protocole de mesure
III.3.1Electrodes Or(-)/ Or(+)
III.3.2 Electrodes SC(-)/ SC(+)
III.3.3 Electrodes Al(-)/ SC(+)
III.3. 4 Electrodes Al(+)/ SC(-)
III.4 Résultats et discussion
III.5 Mesure sur des structures sandwichs sans pré polarisation
III.5.1 Influence des interfaces physiques sur l'accumulation des charges d'espace
III.5.2 Calcul de la profondeur du piège
III.6 Effet d'une charge accumulée à l'interface polymère /polymère sur la dynamique de charge d'espace59
III.6.1 Charge positive à l'interface
III.6.2 Charge négative à l'interface
III.7 Conclusion74

CHAPITRE IV - COMPORTEMENT DES INTERFACES CHIMIQUES

IV.1 Introduction	.82
IV.2 Courant de conduction dans un isolant	.82
IV.2.1 Conduction sous champ faible (14 kV/mm)	82
IV.2.2 Effet du champ électrique	.83
IV.3 Effet de la nature des électrodes sur les charges d'espace et la charge interfaciale	.84
IV.3.1 Polarisation sous tension négative	.85
IV.3.1.1 ElectrodesAl(+) / SC(-)	.85
IV.3.1.2Electrodes SC (+) / SC (-)	.86
IV.3.1.3 Electrodes Or (-) / Or(+)	.87
IV.3.1.4 Discussion	87
IV.3.1.5 Comparaison entre ce que prévoit Maxwell Wagner par rapport à ce qui est mesuré	.89
IV.3.2 Polarisation sous tension positive	.91

IV.3.2.1 Electrodes Al(-) / SC(+)	91
IV.3.2.2 Electrodes SC(-) / SC(+)	92
IV.3.2.3 Electrodes Or (-) / Or(+)	93
IV.3.2.4 Discussion	93
IV.3.2.5 Comparaison entre ce que prévoit Maxwell Wagner par rapport à ce qui est mesuré	95
IV.4 Effet de l'épaisseur des diélectriques sur les charges d'espace et la charge interfaciale pour un	e polarisation
sous tension négative	97
IV.4.1.1 Configuration LDPE / FEP	97
IV.4.1.2 Configuration FEP / LDPE	
IV.4.1.3 Discussion	99
IV.4.2 Effet du champ appliqué	100
IV.4.3 Effet de la température sur la dynamique de la charge d'espace	105
IV.4.3.1 Polarisation sous une tension négative	101
IV.4.3.2 Polarisation sous une tension positive	111
IV.5 Essais après vieillissement thermique et électrique	116
IV.6Calcul de la profondeur des pièges en fonction de la température	
IV.6.1 Polarisation sous tension négative	119
IV.6.1.1 Mesure à T= 40° C	119
IV.6.1.2 Mesure à T= 60° C	121
IV.6.1.3 Calcul de la profondeur des pièges mis en jeu	124
IV.6.2 Polarisation sous tension positive	124
IV.7 Essais sous polarisation inversée	127
IV.7.1 Polarisation négative à -5kV suivie d'une polarisation positive à +5kV	127
IV.7.2 Polarisation positive à +5kV suivie d'une polarisation à -5kV	130
IV.7.3Discussion	133
IV.8 Mesure à 4 heures de polarisation	
IV.8.1 Polarisation sous tension positive à T=20° C, E=14.3kV/mm	133
IV.8.2 Polarisation sous tension négative à T=20° C, E=-20 kV/mm	134
IV.9 Conclusion	135
CONCLUSION	137
LSTE DES SYMBOLES	141
RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES	143

ملخص

سندرس في هذا العمل تكون و تطور الشحنات بدلالة الزمن ، الحقل ، الحرارة ، في طبقة عازل "بلاستيك " أو طبقتين مختلفتين ، تقنية قياس الشحن ، طريقة كهرو – نبضات السمعية . لقد بينا أن إرفاق الشحنة على جانب العازل بمفعول ماكسيول ، واقنر ، سيلاز ، ليس موافق لتعريف ظاهرة الشحنة حتى و لو كان العازلين من نفس النوع المكونين للحافة تراكم الشحن على المستخرجة من القضيب على جانب العازل و ذلك عندما يكون المعدن لا يحتوي على شحن داخلية و طريقة التوليد من التحلل غير موجودة ، قياس و برمجة الحقن ، النقل و استخراج الشحن إذن مهمة لتطوير وسائل الضغط المرتفع التي تحتوي على المعادن البلاستيكية

Résumé

Dans ce travail, nous étudions la formation et l'évolution de la charge d'espace en fonction du temps, du champ et de la température pour une couche diélectrique (polyéthylène) ou une double couche (PE et FEP), avec une attention particulière portée aux interfaces entre électrode et diélectrique, entre deux diélectriques de même nature et entre deux diélectriques de nature différente. La technique de mesure de la charge d'espace est la méthode électro-acoustique pulsée. Nous avons montré que la description classique de la charge d'interface par l'effet Maxwell-Wagner-Sillar n'est pas adéquate pour décrire les phénomènes de charge d'espace même lorsque deux diélectriques identiques constituent l'interface. L'accumulation de charge aux interfaces est gouvernée par l'injection de charges aux électrodes lorsque le matériau ne contient pas de charge interne et que les processus de génération par dissociation sont inexistants. La mesure et la simulation de l'injection, du transport et de l'extraction des charges sont donc essentielles pour développer des dispositifs haute tension contenant des matériaux thermoplastiques.

Mots clés : diélectrique, interface, champ électrique, charge d'espace, électro-acoustique, matériaux thermoplastiques.

Abstract

In this work, we investigate the space charge formation and evolution as a function of time, field and temperature in single dielectric layer (polyethylene) or dielectric layers (polyethylene and FEP), with particular emphasis to interfaces between a metallic electrode and the dielectric, between two dielectrics of the same nature, and between two different dielectrics. The measurement technique for space charge is the pulsed electro-acoustic method. We found that the description of interfaces even if the same dielectric is used to constitute the double layer. Space charge accumulation at interfaces is governed by charge injection for the electrodes in materials where charges are not present or generated (by field-induced dissociation for example) in the bulk. Measurement and simulation of charge injection, charge transport and charge extraction is therefore compulsory to develop high voltage system with thermoplastics.

Key words: dielectric, interface, electric field, space charge, pulsed electro acoustic, thermoplastic materials.

Introduction

Dans les systèmes d'isolation de haute tension les combinaisons des matériaux isolants sont inévitables. Par conséquent, les interfaces entre les diélectriques sont très communes dans des équipements de haute tension [1]. En tant qu'exemple typique, les interfaces sont présentes dans le polymère- type accessoire de câble (jonctions et arrêts), entre l'isolation du câble et celle de l'accessoire. En cas d'équipements de haute tension fonctionnant dans des conditions de tension continue, le champ électrique dépend non seulement de la géométrie de la construction et de la constante diélectrique de l'isolation, mais également et surtout de la conductivité du matériau et de la présence de la charge d'espace. Ceci est dû au fait que la conductivité des matériaux isolants change par des ordres de grandeur avec le champ électrique et la température, tandis que les phénomènes de charges d'espace, inévitables dans la plupart des isolants, sont très difficiles à inclure dans le calcul du champ électrique. La mesure reste donc essentielle pour décrire la distribution du champ électrique en leur présence. En outre, certaines caractéristiques spécifiques de l'interface (par exemple la rugosité extérieure, la présence possible de lubrifiant) entraine une différence entre le volume et la surface, ce qui affecte la présence de la charge interfaciale.

Ce travail est structuré en cinq parties qui sont les suivantes :

Le premier chapitre présente le contexte de l'étude et précise l'exemple considéré qui est celui des câbles de transport d'énergie isolées au polyéthylène. Dans un premier temps, nous définissons les objectifs de l'étude. Nous décrivons ensuite les éléments théoriques et bibliographiques nécessaires à la compréhension de cet ouvrage en introduisant les notions de transport électrique et de charge d'espace dans les matériaux polymères, par essence désordonnés. Les phénomènes de charge d'espace sont traités pour des matériaux homogènes et pour des associations de diélectriques (phénomènes de polarisation interfaciale de type Maxwell-Wagner-Sillar).

Le deuxième chapitre décrit les matériaux utilisés et la technique expérimentale mise en œuvre pour la mesure de la distribution spatio-temporelle des charges d'espace dans des diélectriques sous forme de films de quelques centaines de microns d'épaisseur. Nous y détaillons la méthode électro acoustique pulsée (PEA) et le traitement mathématique post-mesure. Cette méthode, très versatile dans son utilisation, repose sur le principe d'une perturbation transitoire et réversible de la charge d'espace par percussion électrostatique, ce qui donne ensuite naissance à une onde acoustique qui est ensuite détectée et analysée afin en déduire la quantité et la localisation des charges. La sensibilité typique de la mesure est de 0.1 C.m⁻³, et sa résolution spatiale de 10 microns. Nous traitons des problèmes de réflexion acoustique aux interfaces entre matériaux de nature différente et on introduit la procédure de calibrage.

Dans le troisième chapitre, nous décrivons les résultats expérimentaux obtenus sur des films diélectriques simples de polyéthylène réticulé (XLPE) et nous nous intéressons au comportement d'une interface physique constituée par la juxtaposition de deux films de XLPE de même nature. Dans un tel cas, la charge interfaciale dérivée de la formulation de Maxwell-Wagner-Sillar devrait être nul. Nous verrons qu'il n'en est rien puisque l'interface est constituée par le contact entre deux surfaces dont les propriétés électriques sont différentes de celles de volume, bien qu'il s'agisse d'un même matériau.

Le quatrième chapitre traite les multi diélectriques non homogènes constitués de la juxtaposition de films diélectriques de natures différentes. Même dans ce cas où les diélectriques n'ont pas les mêmes propriétés, nous verrons que la formulation de Maxwell-Wagner-Sillar ne permet pas une description adéquate des phénomènes de charge interfaciale et qu'il convient de prendre en considération les phénomènes d'injection aux électrodes que nous mettrons en évidence expérimentalement.

Dans les chapitres 3 et 4, nous mettrons en oeuvre différents protocoles visant à étudier l'influence de plusieurs paramètres tels que la nature du matériau d'électrode, le champ électrique, la température, le temps, l'influence d'une charge accumulée à l'interface, etc.

Le dernier chapitre sera axé particulièrement sur deux procédés numériques. Le premier modèle est basé sur le calcul de la charge d'espace et du champ électrique dans les isolants non homogènes avec des géométries planes. Le deuxième modèle est basé sur la théorie de Maxwell- Wagner pour la polarisation interfaciale.

L'apport global de ce travail est de montrer que les phénomènes d'injection de charges doivent être pris en compte dans le calcul des structures isolantes. Nous montrons que ces phénomènes dépendent très fortement du champ et de la température. Les prédictions théoriques de polarisation interfaciale se révèlent erronées dans la plupart des cas et l'étude du comportement des charges d'espace est indispensable.

I Les câbles à isolant synthétique

I.1 Introduction

La technique d'isolation des câbles de puissance à base de papier imprégné d'huile sous pression, a permis à partir des années soixante dix de transporter de l'électricité sous très haute tension (THT). Cependant, des inconvénients propres au matériel employé, comme le coût d'entretien et de surveillance de ces câbles, a toujours freiné son utilisation à grande échelle. Les progrès dans la fabrication de polymères, pouvant supporter des champs électriques intenses associés à une méthode d'extrusion de câbles par une combinaison de polymère et d'écrans semi conducteurs (SC), a permis de remplacer définitivement le procédé à papier imprégné. Des accessoires de connexion (jonctions et terminaisons de câbles) à base d'élastomère de synthèse et de matériaux SC ont également été développés [2].

Notons cependant qu'il existe d'autres types de câbles destinés à l'enfouissement comme ceux à isolation gazeuse (CIG), ou les supraconducteurs.

La structure type d'un câble à isolant synthétique est présentée sur la figure I.1.



Figure I.1 . Représentation d'un câble à isolant synthétique [2].

Un câble haute tension est constitué d'une âme conductrice recouverte d'un isolant. L'âme centrale conductrice est composée de plusieurs conducteurs habituellement en cuivre ou en aluminium. Deux écrans « semis conducteurs » sont situés de part et d'autre de l'isolant. Ils ont pour rôle d'uniformiser le champ électrique et d'effacer les irrégularités de surface des conducteurs et de diminuer la concentration locale de charges à l'interface réduisant ainsi le risque de claquage. La rigidité diélectrique de l'isolant représente la valeur maximale du champ électrique qu'il peut supporter. Le moindre défaut se situant à l'interface entre l'écran « semi conducteur » et l'isolation peut être à l'origine d'un renforcement de champ électrique et conduire au claquage de l'isolant, ce qui entraîne l'endommagement des câbles. Les

semi conducteurs utilisés sont en fait des copolymères isolants chargés de noir de carbone et qui présentent une conductivité électrique indépendante du champ électrique.

Habituellement, la fabrication des câbles haute tension se fait en co-extrudant l'ensemble des trois couches SC/PRC/SC sous forte pression, de façon à obtenir un matériau le plus homogène possible. L'ensemble est recouvert d'un écran conducteur relié à la terre, dont le rôle est multiple : il sert de blindage afin d'empêcher la propagation du flux électromagnétique, il assure également le retour du courant en cas de court- circuit, et il permet aussi d'éviter l'intrusion d'humidité. Ce conducteur peut être soit un métal pur (cuivre), soit un alliage. La dernière couche est une gaine de protection qui est généralement faite à partir de polyéthylène haute densité. Elle a deux rôles : elle isole l'environnement de la partie conductrice extérieure et elle protége le câble des agressions extérieures telles que la corrosion ou bien l'usure mécanique.

C'est l'étude de la partie située entre les deux conducteurs métalliques (le sandwiche SC- isolant -SC) et en particulier de l'isolant (polymère) qui nous intéresse ici.

I.2 L'isolant synthétique : un polymère

La famille des polymères regroupe un ensemble de matériaux caractérisé par une structure chimique similaire. Ils sont composés d'une molécule élémentaire, appelée monomère, qui répète n fois pour former une macromolécule.

Les isolants constitutifs des câbles de transport sont essentiellement des polyéthylènes. Ils sont synthétisés à partir d'éthylène, de formule $CH_2=CH_2$. Les polyéthylènes appartiennent à la famille des thermoplastiques, et plus particulièrement à celle des polyoléfines, ils sont faciles à mettre en œuvre et peu coûteux ce qui explique en partie leur fort taux d'utilisation dans l'industrie.

I.2.1 Structure chimique d'un polymère

L'élaboration d'un polymère se fait en reliant entre elles les unités de répétition appelées monomères CH_2-CH_2 (provenant elles mêmes de l'ouverture d'une liaison dans le monomère) par des liaisons covalentes. La chaîne carbonée est appelée squelette du polymère. Lors de la polymérisation, les monomères peuvent s'additionner de manière linéaire, ou en se ramifiant. La formation préférentielle d'une de ces deux types de configurations est liée à l'accrochage de chaînes latéralement au squelette de la macromolécule.

La synthèse d'un polymère peut se faire de différentes manières : polymérisation anionique, cationique, radicale, en émulsion... Le point commun de ces synthèses est souvent la présence d'agents amorceurs de réaction et/ ou de catalyseurs, qui sont ajoutés pour augmenter la vitesse de polymérisation. Dans la pratique, les polymères purs ne peuvent pas être utilisés directement dans l'industrie, car ils sont très fragiles, et ils peuvent subir, sous l'action de diverses sources (chaleur, humidité, lumière...) des

dégradations qui se traduisent par une modification de leur structure chimique, et entraînent une altération des propriétés physiques. Lors de leur élaboration, les fabricants ajoutent diverses substances qui modifient et renforcent leurs propriétés :

-des anti-oxydants, permettant aux polymères de ne pas réagir en présence de l'oxygène de l'air;

- des agents de réticulation, qui, après réaction chimique, peuvent se lier aux chaînes de polymère pour former des ponts inter- moléculaires. Ces agents permettent la formation d'un réseau macromoléculaire qui confère au matériau une meilleure stabilité mécanique et thermique ;

- d'autres additifs, comme des plastifiants, des colorants..., en fonction des propriétés recherchées. Tous ces additifs, lors de l'élaboration du polymère, peuvent réagir avec d'autres molécules, et on retrouve dans la matrice solide des traces de ces substances, ou des produits de dégradation de celles-ci. Il est impossible de mettre en évidence tous les types d'impuretés, ni de mesurer leur quantité dans la matrice, mais il existe bien un certain désordre dans ces matériaux. Nous appellerons ce désordre de type chimique, car il est dû essentiellement à des résidus liés à la synthèse du polymère. Nous verrons par la suite le rôle que peuvent jouer ces impuretés dans le transport de charge dans ces matériaux.

I.2.2 Structure physique d'un polymère

On entend par structure physique l'architecture de la chaîne lors de l'élaboration du polymère. L'arrangement le plus simple est la disposition des atomes ou des groupes d'atomes les uns par rapport aux autres. Ceux-ci peuvent s'arranger en tournant autour des liaisons covalentes simples, afin d'adopter la conformation qui demande le moins d'énergie (Figure I.2.). ADN (polymère de nucléotides) par exemple, qui est une macromolécule, a une conformation hélicoïdale, mais d'autres peuvent opter pour une conformation plus simple [3].



Figure I.2. Représentation schématique de l'arrangement des atomes les uns par rapport aux autres rotations ϕ autour de l'axe d (exemple d'un groupement $-C_2H_4$ -)[3].

La cristallinité qualifie le caractère ordonné à longue distance de molécules ou d'atomes. Les polymères cristallisent lorsqu'ils ont une structure régulière (condition non suffisante). Il existe souvent des irrégularités, comme des ramifications, et le polymère ne cristallise que partiellement. Il est dit semi - cristallin. Il comporte deux phases, une cristalline, très ordonnée, et une amorphe. S'il n'existe aucun arrangement, le polymère est amorphe.

Les impuretés chimiques évoquées au paragraphe précédent altèrent elles aussi la structure physique du polymère, puisqu'elles distordent la maille cristallographique.

Toutes ces distorsions de structure physique créent un désordre au sein de la matrice polymère solide, on l'appellera désordre physique ou conformationnel [3].

I.3 Les polyéthylènes

Il en existe différents types qui son classés selon leur densité, elle-même dépendante de la configuration des chaînes (longueur, masse molaire, ramification, réticulation) [4]:

Nomenelature francoice	Nomenelature angleise	Densité	
nomenciatui e ii ançaise	Nomenciature anglaise	(g/cm ³)	
PE-UHPM	UHMWPE	0.030 0.035	
polyéthylènes à poids moléculaire élevé	ultra high molecular weight polyethylene	0.730 - 0.733	
PE-HD	HDPE	0.041 0.000	
Polyéthylène à haute densité	high density polyethylene	0.941 - 0.990	
PE-RHD	HDXLPE	0.050 0.000	
Polyéthylène réticulé à haute densité	high density cross-linked polyethylene	0.930 - 0.990	
PE-R	XLPE	0.050	
Polyéthylène réticulé	cross-linked polyethylene	0.930	
PE-MD MDPE		0.026 0.040	
Polyéthylène à moyenne densité	medium density polyethylene	0.926 - 0.940	
PE-BD	LDPE	0.910 0.940	
Polyéthylène à basse densité	low density polyethylene	0.910 - 0.940	
PE-BDL	LLDPE	0.015 0.025	
Polyéthylène linéaire à basse densité	linear low density polyethylene	0.915 - 0.925	
PE-TBD	VLDPE	0.880 0.915	
Polyéthylène à très basse densité	very low density polyethylene	0.000 - 0.913	

Tableau I.1 : Nomenclatures des polyéthylènes suivant leurs densités.

Les plus couramment utilisés dans les isolants synthétiques constituant les câbles sont le XLPE et le LDPE, ceci en raison de leur bonne résistance aux contraintes électriques et thermiques usitées mais aussi en raison de leur faible coût et de leur facilité de fabrication... C'est essentiellement ces deux matériaux qui seront utilisés pour les mesures de charges d'espace dans le chapitre III.

I.4 Structure des bandes d'énergie

I.4.1 Notion de bandes d'énergie

Dans un solide cristallin, les électrons occupent des états quantiques ayant la symétrie du cristal. Chacun de ces états est caractérisé par une énergie et l'ensemble des énergies accessibles aux électrons est appelé le spectre.

Pour tous les solides cristallins ce spectre est constitué de deux bandes d'énergies distinctes :

- La bande de valence est la bande d'énergie où se situent les électrons contribuant à la cohésion locale du cristal (entre atomes voisins). Ces états de plus haute énergie sont affectés par la présence des autres atomes.

- La bande de conduction où se situent les états d'énergie supérieure délocalisés. Les électrons occupant cette bande sont appelés électrons de conduction, ou électrons libres.

Ces deux bandes sont séparées par une bande interdite ou gap (figure I.3).

L'énergie de la bande interdite est la quantité d'énergie nécessaire à un électron pour passer de la bande de valence à la bande de conduction lorsque celui-ci est soumis à une excitation[3].



Figure.I.3. Diagramme de bande d'énergie, a) pour un réseau cristallin parfait, b) pour un polymère

On peut étendre cette notion de diagramme de bande aux polymères, bien qu'ils ne correspondent pas à des réseaux cristallins parfaits (figure b).

Les défauts entraînant une perte locale de la périodicité du réseau, introduisent des niveaux d'énergie supplémentaires qui peuvent se situer à l'intérieur de la bande interdite de l'isolant.

Si le porteur (électron ou trou) est faiblement lié au défaut, alors le niveau d'énergie associé

 E_T (habituellement de quelque eV) est proche de E_C dans le cas d'un électron, ou de E_V dans le cas d'un trou figure (I.4), tel que E_V : énergie de la bande de valence_c, E_c , énergie de la bande de conduction_c, E_T : énergie de la bande interdite. Ce défaut est qualifié de peu profond ou d'état de queue de bandes. Au contraire, le porteur se retrouve fortement lié au défaut, alors le niveau E_T est situé loin de E_C et E_V , c'est –à- dire relativement proche du milieu de la bande interdite. On qualifie ce défaut de profond.





I.4.2 Notion de piège

Un isolant parfait pourrait être défini comme un matériau présentant une structure cristalline sans défaut et une parfaite pureté de telle sorte que les seules sources de charges internes soient les atomes du réseau. En réalité, iln' existe que des isolants imparfaits qui contiennent des défauts de fabrication et de mise en œuvre. Ces défauts introduisent des niveaux d'énergie à l'intérieur de la bande interdite qui sont assimilables à des puits de potentiel capables de capturer des porteurs. Un défaut peut se comporter comme un lieu de piégeage s'il capture un porteur de la bande de conduction (ou de valence) et le réémet ensuite vers cette même bande, ou comme un lieu de recombinaison si l'échange met en jeu des porteurs de signes opposés.

I.4.3 Le piégeage des charges

Les phénomènes opposés à la liberté des charges électriques s'appellent le piégeage. Le piégeage de charges correspond, pour les électrons, à leur mise en équilibre dans des niveaux énergétiques inférieurs au bas de la bande de conduction. Les sites de piégeages correspondent à une variation de la permittivité diélectrique du réseau. Ceci à pour effet de créer un trou de potentiel dans lequel l'électron, si son énergie est suffisamment faible, pourra être piégé.

Les sites de piégeage peuvent être de diverses natures. Dans le cas des matériaux monocristallins, des dislocations, impuretés, lacunes peuvent être à l'origine d'une variation de permittivité et donc d'un piégeage. Dans le cas des matériaux semi- cristallins ou des poly-cristaux, les joints de granits et les zones amorphes constituent des lieux ou interfaces propices à un piégeage des charges [5].

Le piégeage est donc possible à des niveaux d'énergie variables. De plus, des niveaux localisés ou des bandes d'énergies sont disponibles dans la bande interdite. Dans les polymères, le niveau de piégeage moyen globalement accepté est compris entre 0.1 et 1 eV pour les électrons faiblement piégés, et jusqu' à 3 eV pour les pièges de forte énergie (défaut chimiques) [6]. Un électron piégé est susceptible d'être dépiégé, notamment s'il reçoit une énergie extérieure, par exemple thermique. Ainsi, on pourra considérer la mobilité des charges électriques dans le matériau en fonction du temps passé dans les pièges par rapport au temps passé à un niveau d'énergie suffisamment élevé pour considérer que l'électron est mobile.





I.5 Phénomène donnant lieu à un courant dans le circuit

I.5.1 Phénomène ionique

Dans les polymères, il existe des ions, en plus ou moins grandes quantités. Les ions peuvent provenir d'impuretés, dépendant des procédés de fabrication, des processus d'ionisation liés, par l'absorption de rayonnement, des processus de dégradation du matériau ou encore de l'absorption de contamination, comme les molécules d'eau qui peuvent, en se dissociant, former des ions OH⁻. Lors de l'application d'un champ électrique, le transport d'ions résulte en un transport de matière, puisque la masse et la

taille de ces ions sont incomparables avec celles des électrons et des trous. La mobilité de ces ions est ainsi beaucoup plus faible que la mobilité électronique. Dans ce cas, le mécanisme de transport est en fait une série de sauts au dessus des barrières de potentiel, qui permet aux ions de se mouvoir d'un site à un autre. Ces barrières de potentiel sont créées par la structure complexe du matériau et peuvent être modifiées lorsqu'un champ électrique extérieur est appliqué [7- 8].

I.5.2 Phénomène dipolaire

Sous l'action d'un champ électrique, un dipôle s'oriente et crée donc un déplacement de charge. Ce déplacement local, étendu à tout le volume du diélectrique, crée donc un courant du point de vue extérieur, mais il ne correspond pas à un mécanisme de transport de charge proprement dit. Dans le cas d'une sollicitation continue, les dipôles vont s'orienter et atteindre une position d'équilibre qui correspond à l'annulation du courant de polarisation. Une fois la contrainte relaxée, les dipôles vont se redistribuer grâce à l'énergie thermique. Cette redistribution est à l'origine d'un courant de dépolarisation. La figure suivante (figure I.6) donne un aperçu de l'allure classique d'une polarisation suivie d'une dépolarisation.



Figure I.6. Courant d'orientation dipolaire (effet de la polarisation)

Nous voyons que la polarisation n'est pas instantanée. L'allure des courbes suit une exponentielle négative, liée au temps. L'expression de la densité de courant est la suivante :

$$j(t) = \frac{dQ(t)}{dt}$$
(I. 1)

En exprimant la permittivité en fonction de la fréquence, on a :

 $\varepsilon_r(t) = \varepsilon_{\infty} + (\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty})(1 - e^{t/\tau})$

Avec ε_{∞} la permittivité pour des fréquences infinies et ε_s celle correspondant à un champ statique (fréquence nulle) et τ la constante de vitesse de dépolarisation.

On a donc :

$$Q(t) = C(t)V = \varepsilon_r(t)C_0V_0 \tag{I.2}$$

D'où, l'expression finale de la densité de courant :

$$j(t) = \frac{C_0 V_0}{\tau} \left(\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty} \right) \exp\left(\frac{-t}{\tau}\right)$$
(I.3)

I.5.3 Phénomène électronique

Dans le cas des porteurs de charges positif et négatif (électrons et des trous), la conduction électronique peut être considérée comme un flux de porteurs contrôlé soit par des phénomènes d'interface électrode- diélectrique, soit par des phénomènes de volume au sein du diélectrique.

I.5.3.1 Mécanisme contrôlé par l'interface

Les mécanismes de génération de charges aux interfaces sont plus connus. De nombreuses études [9-10-11] menées à ce sujet ont permis de comprendre en partie ces processus contrôlés par les interfaces, et en particulier pour des interfaces de type métal isolant.

En effet, lorsqu'une charge électrique a acquis suffisamment d'énergie thermique, elle peut quitter l'environnement électronique auquel elle appartenait, créant ainsi une charge libre pouvant être injectée dans l'isolant. Encore sous l'effet d'un champ électrique élevé, des charges pouvant être injectée dans l'isolant à partir de l'électrode et peuvent se déplacer vers le volume du diélectrique. Ces mécanismes ne dépendent pas seulement de la tension appliquée et de la température, mais aussi d'autres facteurs tels que : la nature du polymère et de l'électrode.

Au contact métal – isolant, il existe une barrière de potentiel ϕ : la bande de valence de l'isolant est située à un niveau inférieur par rapport au niveau de Fermi du métal. Pour qu'un électron du métal puisse passer dans l'isolant, il doit absorber une énergie minimale, équivalente à la hauteur de la barrière. Le diagramme des bandes énergétiques est schématisé dans la figure 1.7.

Le problème majeur pour l'électron est de franchir la barrière de potentiel qui existe entre le métal et l'isolant. L'application d'un champ électrique a pour conséquence la réduction de la hauteur ϕ de cette barrière. Ce phénomène est schématisé à la figure I.7, il résulte de l'énergie potentielle de l'électron

(figure1.7. b) due au champ appliqué, et la superposition des effets de la charge d'influence et du champ appliqué (figure1.7. c).



Figure I.7. Diagramme d'énergie potentielle pour une interface métal- isolant :

a) en absence de champ électrique, b) lors de l'application d'un champ électrique, c) en tenant compte de la charge d'influence.

Deux mécanismes de franchissement de la barrière sont décrits dans ce qui suit : l'effet Schottky et l'effet Fowler-Nordheim.

a-Injection de type Schottky

La génération de charges dans le diélectrique par effet Schottky est aussi appelée effet thermo – électronique [12] Elle tient compte de l'injection de charges dans le diélectrique par passage au dessus de la barrière de potentiel que représente l'interface. Il est représenté par la figure (I.7.b). L'application d'un champ électrique va abaisser la barrière de potentiel et donc favoriser ce type d'injection. La hauteur de la barrière s'exprime alors par:

 $\phi = \phi_0 - \beta_s \sqrt{E}$ est la barrière d'injection.

 β_s : est la constante de Schottky, sa valeur dépend du matériau diélectrique considéré et est calculée selon l'équation :

$$\beta_{s} = \sqrt{\frac{e^{3}}{4\pi\varepsilon_{r}\varepsilon_{0}}}$$

La densité de courant d'injection j tenant compte de cette diminution de barrière de potentiel est donnée par

$$J_{Schottky} = AT^{2} \exp\left(-\frac{\phi_{0} - \beta_{S}\sqrt{E}}{KT}\right)$$
(I. 5)

Ou A est la constante de Richardson - Schottky et donnée par :

$$A = 4\pi .m.k^2 / h^3 = 120A / cm^2$$

Avec m : masse de l'électron

h : Constante de Planck

La première partie du terme de droite représente l'émission thermique, alors que la seconde est fonction du champ électrique. Il est à noter que lorsque le champ électrique est nul, la densité de courant n'est pas nulle, mais provient simplement de l'effet thermique.

b- Injection de type Fowler-Nordheim

L'injection par effet de champ, aussi appelée Fowler-Nordheim est liée à la théorie quantique [9-13]. Un électron de la couche électronique du métal a une probabilité non nulle de se trouver à un instant donné de l'autre coté de la barrière de potentiel. Cette probabilité non nulle ne permet pas à certains électrons de passer à travers la barrière de potentiel sans avoir l'énergie nécessaire pour la franchir (tunnel). Le phénomène est intimement lié à la fonction d'onde des particules, qui décroît rapidement avec l'augmentation de la distance. L'injection de type Fowler-Nordheim ne devient significative que pour des champs élevés $\geq (10^9 \text{ V} \cdot \text{m}^{-1})$, dans ce cas, l'épaisseur de la barrière de potentiel (dm) est très fine (Figure I.6.c.).

L'expression du courant pour l'injection de Fowler-Nordheim s'écrit :

$$J = AE^2 \exp\left(-\frac{\beta}{E}\right) \tag{I.6}$$

Dans cette équation, on a :

$$A = \frac{e^{3}}{8\pi\hbar\phi_{0}}$$
 et $\beta = 4[(2m)^{1/2}\phi_{0}^{3/2}]$

Le courant obtenu est indépendant de la température, et dépend principalement du champ électrique.

I.5.3.2 Mécanismes contrôlés par le volume du polymère

Les polymères ne vont donc pas conduire l'électricité par la conduction d'une grande quantité d'électrons libres dans l'une des bandes d'énergie autorisées, que ce soit la bande de valence (pleine) ou la bande de conduction (quasiment vide). Cependant, les électrons peuvent être conduits au sein du matériau par différents mécanismes de conduction dans le volume diélectrique. Ces mécanismes deviennent prépondérants dans le cas des isolants et contrôlent donc le déplacement des charges électriques dans les polymères.

a-Comportement ohmique

Sous un faible champ (quelque kV/mm), les matériaux isolants obéissent à la loi d'ohm. La densité de courant circulant dans le matériau s'exprime en fonction du champ électrique par :

$$J = \sigma . E \tag{1.7}$$

J: étant la densité de courant (A/m²), E le champ électrique appliquée (V/m) et σ (Ω^{-1} .m⁻¹) indépendante du champ électrique dans ce cas.

b-Mécanisme de Poole-Frenkel

Ce mécanisme, proposé par Poole Frenkel, évoque le cas d'un électron piège et soumis à un champ extérieur. Ce phénomène est analogue à l'effet Schottky. Il décrit l'abaissement de la barrière de potentiel à franchir par une charge piégée dans un puit de potentiel [14-15]. L'abaissement d'énergie est lié à la présence d'un champ électrique (terme $\Delta \phi$). L'énergie KT va permettre à la charge piégée de passer dans la bande de conduction temporairement et autoriser au saut vers un autre piège. Poole Frenkel a montré que la probabilité de saut s'exprime par :

$$P = P_0 \exp\left(-\frac{\phi}{KT}\right) \tag{I. 8}$$

Avec ϕ : l'énergie de la barrière

- *P* : La probabilité de saut
- *KT* : L'énergie d'activation thermique
- P_0 : La probabilité de saut initiale



Figure I.8. Effet de Poole Frenkel

L'expression de la densité de courant résultant de ce phénomène est donc :

$$J = J_0 . \exp\left[-\left(\frac{\phi_0 - \Delta\phi}{KT}\right)\right]\sigma\tag{I. 9}$$

Avec $\Delta \phi = \beta_{PF} E^{1/2}$

où $\Delta \phi$ est la hauteur de la barrière J_0 est la densité de courant à T=0 K.

 β_{PF} , la constante de Pool Frenkel est équivalente à :

$$\beta_{PF} = \left(\frac{q^3}{\varepsilon_r \varepsilon_0}\right)^{1/2}$$

Ainsi, l'expression de la densité de courant due à l'effet Pool Frenkel s'écrit :

$$J = J_0 . \exp\left[-\left(\frac{\phi_0 - \beta_{PF} E^{1/2}}{KT}\right)\right] \sigma$$
(I. 10)

Le courant obtenu dépend principalement du champ électrique et de la température.

c-Conduction par « hopping »

La structure de bande décrite au paragraphe I.4. Pour des polymères isolants réels montre que les défauts de structure entraînent l'existence de sites énergétiques pouvant être occupés par les porteurs. Dans ce cas, le niveau de Fermi est une valeur d'énergie qui, en première approximation, sépare les niveaux occupés des niveaux vides.



Figure I.9. Représentation schématique de la conduction a) par hopping, b) par effet tunnel.

A chaque site est associé une fonction d'onde, qui d'après la mécanique quantique est liée à la probabilité de présence. Lorsque les sites sont spatialement et/ ou énergétiquement proches, il y a un recouvrement non négligeable des fonctions d'onde et donc une probabilité de passage d'un site à l'autre.

Plus on se rapproche du niveau de Fermi, plus la probabilité d'occupation se rapproche de 1/2 et plus on a de chance de trouver des sites donneurs (occupés) ou accepteurs (vides) proches les uns des autres. On peut donc avoir un processus de migration de porteurs d'origine purement quantique qui se manifeste autour du niveau de Fermi [15-16].

En optimisant les compromis entre distance énergétique et distance spatiale, la conductivité peut s'écrire :

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

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

L'expression du courant pour une conduction par saut est de la forme [17] :

$$J = J_0 \exp\left(-\frac{E_a}{KT}\right) 2\sinh\left(\frac{ea.E}{2.KT}\right)$$
(I. 11)

Dans cette expression, a est la distance entre deux pièges.

d-Courant limité par charge d'espace

La conduction résulte du mouvement de porteurs de charges sous l'effet d'un champ appliqué. Elle dépend fortement de l'épaisseur du diélectrique. Considérons le cas idéal d'un diélectrique exempt de pièges, où le transport est unipolaire. Les électrons sont injectés à la cathode par un bon contact ohmique, et la diffusion est négligée [18]. Dans un premier temps, la charge d'espace ρ injectée à la cathode, est faible à l'intérieur du diélectrique. Ces charges de mobilité μ , soumises à un champ électrique E, auront une vitesse $\nu = \mu$.E. La densité de courant résultant du mouvement de ces charges libres ρ à la vitesse ν , est régie par la loi d'Ohm :

$$J_{Ohm} = \mathbf{v} \cdot \mathbf{\rho} = \mathbf{\rho} \cdot \mathbf{\mu} \cdot E \tag{I.12}$$

 μ : La mobilité.

 ρ : La charge d'espace.

 ν : La vitesse de la charge d'espace.

Cette relation ne reste valide que si les charges injectées ne modifient pas le champ interne.

Dans un deuxième temps, lorsque les charges injectées sont plus importantes que les charges intrinsèques, la relation courant –tension va dépendre de la répartition énergique et de la densité des pièges. Des modélisations comportant un seul site de piégeage donnent la relation :

$$J = \frac{9}{8} \varepsilon_r \cdot \varepsilon_0 \cdot \theta \cdot \mu \cdot \frac{V^2}{L^3}$$
(I. 13)

Ou θ : est le rapport porteurs libres / porteurs pièges, L l'épaisseur de l'échantillon et V la tension appliquée.

Si on considère une répartition exponentielle de pièges, l'expression de la densité de courant devient alors :

$$J = \frac{9}{8} \varepsilon_r \varepsilon_0 \cdot \theta \cdot \mu \cdot \frac{V^{l+1}}{L^{2l+1}}$$
(I. 14)

Avec 1 < l < 3 suivant la distribution en énergie des pièges.

Une fois tous les pièges remplis, la densité de courant J est proportionnelle à V^2 .

I.6 La charge d'espace

I.6.1 Origine des charges d'espaces

Les matériaux utilisés dans l'isolation électrique ne se comportent jamais comme des isolants parfaits. Ils sont susceptibles de se charger électriquement sous l'action de la température et/ou d'un champ électrique. La charge d'espace est définie par l'ensemble des charges électriques positives ou négatives, piégées dans un diélectrique, ce qui inclut les charges de surface et de volume. Les charges en volume peuvent être des dipôles d'orientation ou de déformation (figure I.10.a), des impuretés ioniques « provenant du mode de fabrication (figure I.10.b), issues d'un phénomène d'injection d'électrons / trous (figure I.10.c), ou enfin issue d'une dissociation d'espèces initialement neutres (figure I.10.d). Les charges en surface apparaissent par principe d'influence totale soit en réponse aux dipôles et en vertu du déplacement électrique équivalent à une absence de matière inter électrode, on parle alors de charge de polarisation dipolaire et de déplacement électrique absolu, soit en réponse aux autres charges d'espace, et on les nomme alors charges images, soit enfin par décharge de surface (figure I.10.e)[19].



Figure I.10. Synthèse des différents types de charge d'espace

I.6.2 Effet des charges d'espace sur le champ appliqué

La conséquence première de la présence de charges d'espace dans le volume d'un isolant électrique est la distorsion du champ électrique appliqué. Quelques exemples qualitatifs des modifications du profil de champ sont représentés à la figure I.9, par Laurent [19].



(a) Isolant sans charge sous tension : champ homogène



(b) Isolant chargé en court -circuit : existence d'un champ à V=0





(d) Hétérocharge sous champ :

champ renforcé aux interfaces, réduit en volume

Figure I.11. Charge d'espace et distribution du champ électrique

Les renforcements locaux du champ électrique peuvent être à l'origine de mécanismes néfastes pour l'isolation. Ces renforcements locaux peuvent également être à l'origine des défauts responsables de la dégradation rapide de l'isolant tel que les décharges partielles et les arborescences. Zhang et al ont observé que le champ appliqué peut être multiplié par un facteur 5 à 8 au voisinage des électrodes après de longues polarisations sous contrainte continue [20]. Or un champ électrique renforcé signifie une plus grande énergie des porteurs mobiles qui peuvent donc endommager l'isolant.

I.6.3 Polarisation interfaciale ou de Maxwell Wagner

Certains matériaux isolants sont des matériaux hétérogènes et constitués de diélectriques à caractéristiques différentes. Maxwell a proposée une théorie améliorée plus tard par Wagner, puis Sillars, puis plus récemment par d'autres auteurs comme Bruggemann, pour expliquer le comportement de ces diélectriques en continu [17].

Disposant deux plaques isolantes d'épaisseur d_A , d_B entre deux plaques métalliques le dispositif est considéré comme une capacité de Maxwell Wagner. Appliquons à t=0 un échelon de tension d'amplitude U_0 . Soient les permittivités $\mathbf{\mathcal{E}}_A$ et $\mathbf{\mathcal{E}}_B$, les conductivités $\mathbf{\sigma}_A$ et $\mathbf{\sigma}_B$ respectivement de l'isolant A et B.



I.12. Représentation de deux diélectriques en position de mesure (condensateur de Maxwell-Wagner)

A t = 0, les inductions électrique D_A et D_B sont égales puisqu'il n'y pas de charges interfaciales, d'où : $\varepsilon_0 \varepsilon_{rA} E_A = \varepsilon_0 \varepsilon_{rB} E_B$ (I. 15)

Les courants de conduction i_{cA} et i_{cB} sont différents dans les deux couches et il apparaît donc une charge interfaciale q_{AB} .

En régime stationnaire, il faut atteindre la condition $i_{cA} = i_{cB}$, soit :

$$E_A \sigma_A = E_B \sigma_B \tag{I. 16}$$

Il existe un régime transitoire, pour passer de la situation décrite par (I.15) à celle décrite par (I.16) On peut remarquer que si on a :

$$\sigma_A \varepsilon_{R} = \sigma_B \varepsilon_{R} \tag{I. 17}$$

Les relations (I.15, I.16) sont satisfaites simultanément et il n'y a donc ni régime transitoire, ni accumulation de charge à l'interface.

Si tel n'es pas le cas, l'accumulation de charges à l'interface a pour conséquence d'abaisser le champ appliqué au matériau de plus forte conductivité et de l'augmenter pour celui de plus faible conductivité de telle sorte que l'équation (I.16) soit satisfaite. On peut relier la charge q (t) accumulée à l'interface des deux diélectriques aux valeurs instantanées e_A (t) et e_B (t) des champs électriques par :

$$\varepsilon_{rB}\varepsilon_0 e_B(t) - \varepsilon_{rA}\varepsilon_0 e_A(t) = q_{A,B}(t)$$
(I. 18)

Soit, en dérivant par rapport au temps :

$$\varepsilon_{rB}\varepsilon_0 \frac{de_B(t)}{dt} - \varepsilon_{rA}\varepsilon_0 \frac{de_A(t)}{dt} = \frac{dq_{A,B}(t)}{dt} = i_{cA}(t) - i_{cB}(t)$$
(I.19)

Le courant traversant chacun des diélectriques s'écrit :

$$i_{A}(t) = i_{cA}(t) + \varepsilon_{rA}\varepsilon_{0} \frac{de_{A}(t)}{dt}$$
(I. 20)

$$i_B(t) = i_{cB}(t) + \varepsilon_{rB}\varepsilon_0 \frac{de_B(t)}{dt}$$
(I. 21)

Les équations (I.19) à (I. 21) permettent de calculer les expressions de $e_A(t)$, $e_B(t)$ et $i_A(t)$, $i_B(t)$, dans le cas simple où les deux diélectriques ont la même épaisseur (l), on aboutit à :

$$e_{A}(t) = \left[\frac{\sigma_{B}}{\sigma_{A} + \sigma_{B}}\frac{V_{0}}{l} + \frac{V_{0}}{l}\frac{\varepsilon_{rB}}{\varepsilon_{rA} + \varepsilon_{RB}} - \frac{\sigma_{B}}{\sigma_{A} + \sigma_{B}}\right]\exp\left(-\frac{t}{\tau}\right)$$
(I. 22)

$$i_{A}(t) = \frac{V_{0}\sigma_{A}\sigma_{B}}{l(\sigma_{A} + \sigma_{B})} + \frac{V_{0}}{l(\sigma_{A} + \sigma_{B})} \left[\left(\frac{\sigma_{A}\varepsilon_{B} - \sigma_{B}\varepsilon_{A}}{\varepsilon_{rB} + \varepsilon_{rA}} \right) \right] \exp \left(-\frac{t}{\tau} \right)$$
(I. 23)

On voit bien, dans la relation (I.23), que le courant est composé d'un courant de conduction ne dépendant pas du temps, il est uniquement fonction des conductivités des deux diélectriques, et d'un courant transitoire de type exponentiel décroissant dont la constante de temps dépend des conductivités et des permittivités relatives.

Des expressions similaires (I.22) et (I.23) peuvent être évidemment établies pour $e_B(t)$ et $i_A(t)$, on remarque que, pour $t = \infty$ (régime stationnaire), on trouve :

$$i_A = i_B = \frac{V_0 \sigma_A \sigma_B}{l(\sigma_A + \sigma_B)}$$
(I. 24)

Alors que e_2 est différent de e_1 pour satisfaire l'équation (16).

La théorie de maxwell Wagner MW donne une expression sous forme mathématique pour le calcul du champ électrique qui dépend de la charge interfaciale.

Quand une tension continue U_0 est appliquée à travers le condensateur de maxwell, la charge extérieure devient :

$$\rho_{\text{LDPE calculé}} = \mathbf{K} (\mathbf{t}) = \frac{\varepsilon_A \sigma_B - \varepsilon_B \sigma_A}{\sigma_A d_B + \sigma_B d_A} U_0 \left[1 - e^{-\frac{t}{\tau_{mw}}} \right]$$
(I. 25)

ou d_A et d_B sont les épaisseurs des deux diélectriques A et B, σ_A , σ_B : les conductivités du matériaux A et B, ε_A , ε_B les constantes diélectriques des matériaux A et B, τ_{mw} : la constante du temps donnée par l'équation (I. 26).

Où
$$\tau_{mw} = \frac{d_A \varepsilon_B + d_B \varepsilon_A}{d_A \sigma_B + d_B \sigma_A}$$
 (I.26)

L'avantage principal de l'approche de Maxwell-Wagner est que la charge interfaciale peut être directement calculée à partir de la connaissance de quelques propriétés d'isolation et de la valeur de l'épaisseur d'isolation. Nous notons qu'une fois la charge interfaciale est connue, le champ électrique à l'interface peut être trouvé [21-22-23].

$$E_{A(B)}(t) = \frac{U - \frac{K(t)d_{B(A)}}{\varepsilon_{B(A)}}}{d_{A(B)} + d_{B(A)} \cdot \frac{\varepsilon_{A(B)}}{\varepsilon_{B(A)}}}$$
(I. 27)

L'équation (I.27) prouve que dans une combinaison de deux diélectriques la distribution du champ électrique change en fonction du temps, en raison de l'accumulation de la charge interfaciale. La conductivité des matériaux isolants dépend fortement du champ électrique appliqué. Ainsi également la conductivité change à temps tandis que les charges s'accumulent à l'interface diélectrique. Si la dépendance du champ de la conductivité est prise en considération, l'approche conventionnelle de Maxwell - Wagner discutée ci-dessus n'est plus valide.

La charge interfaciale et le champ électrique doivent être calculés numériquement. A cette fin, le procédé numérique présenté au chapitre V est utilisé, après avoir été adapté à la géométrie plate. Puis les résultats calculés numériquement sont comparés aux résultats du calcul conventionnel de Maxwell - Wagner.

Afin de considérer ce phénomène, le modèle physique que nous avons présenté est basé sur les propriétés macroscopiques des isolants (tel que la constante diélectrique et la conductivité doivent être considérées comme fonction du champ et de la température locaux).

Une fonction de conductivité a été dérivé expérimentalement à partir des mesures du courant de conduction est employée comme paramètre d'entrée pour la caractérisation de l'isolation.

I.6.4 Effet de l'interface de contact selon la théorie de Maxwell - Wagner I.6.4.1 Considérations sur les interfaces diélectriques

a- Modèle d'interface

Dans un système homogène qui contient plusieurs couches diélectriques, lorsque l'on passe d'une phase à une autre adjacente, les cavités microscopiques sont inévitables, leur taille est de l'ordre de quelques microns au plus, selon la rugosité extérieure et la pression appliquée. Ces cavités peuvent être remplies d'air en cas de contact pur entre deux corps. En outre, la surface de l'isolant peut montrer la conduction ohmique en raison du film condensé de l'eau ou parce qu'un traitement chimique spécifique à été appliqué.

Cependant, aussi en cas de surface sèche et propre de l'isolateur, les mécanismes de conduction extérieure sont différents de ceux actifs dans le volume [24].

Pour ces raisons, la conductivité de la couche extérieure d'un isolant peut être des ordres de grandeur plus importante que celle dans son volume.

Au contraire, la constante diélectrique est pratiquement la même en volume et en surface puisque la constante diélectrique est en règle générale, une propriété matérielle intrinsèque.

Comme le montre la figure I.13, on a deux types d'interfaces entre deux diélectriques A et B qui peuvent être modélisés suivant la rugosité des interfaces.



Figure I.13. Les interfaces de contacts entre deux diélectriques (a)interface rugueuse (b) interface lisse

b- L'effet des lubrifiants

Les lubrifiants tels que l'huile ou la graisse sont souvent appliqués aux interfaces diélectriques de équipements de HT. Généralement les lubrifiants ont une conductivité beaucoup plus élevée que celle des matériaux isolants. Par conséquent, on s'attend à ce que la conductivité de l'interface augmente quand des lubrifiants sont employés.

c- L'effet des trous d'air

Les trous d'air sont présents dans les interfaces en contact simple (interfaces physiques) quand aucun lubrifiant n'est présent ou quand le lubrifiant s'est desséché. Les trous d'air peuvent affecter l'accumulation de la charge interfaciale.

I.6.4.2 Le modèle de trois couches pour une interface diélectrique

La frontière électrique qui divise les propriétés électriques en volume de deux diélectriques n'est pas lisse et présente toujours des cavités d'air qui changent leur propriété électrique par rapport au volume. Pour cette raison, l'interface est considérée comme une couche extérieure de deux diélectriques.

Sur la figure (I.14) nous représentons une vraie interface entre deux diélectriques A et B qui modélisée en tant que diélectrique factice 'C' entre deux interfaces qui se comportent selon la théorie de Maxwell -Wagner. Le diélectrique 'C' explique un contact imparfait entre les surfaces de deux diélectriques A et B à cause de la présence possible des lubrifiants et la conductivité plus élevée de la surface des diélectriques.



Figure I.14. Les interfaces de contacts entre deux diélectriques (a) interface réelle, (b) interface Maxwell-Wagner [24].

Le diélectrique factice 'C' peut être caractérisé par une épaisseur d_c , une permittivité ε_c , une conductivité σ_c . La rugosité des surfaces ξ_A et ξ_B des diélectriques 'A ' et 'B' déterminent l'épaisseur du diélectrique 'C'.

$$d_c = \xi_A + \xi_B \tag{I. 28}$$

L'équation (I.28) est valide si la déformation des crêtes extérieures microscopiques est relativement petite. Cependant, l'augmentation de la pression mécanique du contact entre les couches fait une réduction de l'épaisseur d_c . La constante diélectrique ε_c est principalement donnée par la constante diélectrique du lubrifiant ε_l qui peut être présent à l'interface et par les constantes diélectriques ε_A et ε_B des diélectriques A et B.

Si ε_l est plus petit que ε_A et ε_B , la relation suivante est valide :

$$\varepsilon_{l} < \varepsilon_{c} < \frac{\varepsilon_{A}\xi_{A} + \varepsilon_{B}\xi_{B}}{\xi_{A} + \xi_{B}}$$
(I. 29)

Si aucun lubrifiant n'est présent à l'interface, la constante diélectrique du vide ε_0 est remplace par ε_l dans l'équation (I.29).

Concernant la conductivité σ_c , une distinction peut être faite entre deux situations.

Si un lubrifiant est présent dans l'interface, la conductivité du diélectrique 'C' sera principalement donnée par la conductivité de la couche extérieure des diélectriques 'A' et 'B', et par la conductivité du lubrifiant σ_1 .En supposant que la conductivité de la surface des diélectriques A et B est plus haute que celle de la majeure partie des isolateurs (σ_A et σ_B) et en supposant que les lubrifiants tels que le pétrole ou la graisse sont normalement plus conducteurs que les isolateurs pleins, la conductivité σ_c résulte :

$$\boldsymbol{\sigma}_{A}, \boldsymbol{\sigma}_{B} \ll \boldsymbol{\sigma}_{c} \ll \boldsymbol{\sigma}_{I} \tag{I. 30}$$

Au cas où aucun lubrifiant ne serait présent entre les matériaux 'A ' et 'B ', on s'attend à ce que la conductivité σ_c soit inférieure à celle précédemment estimée, mais toujours plus fortement que la conductivité des volumes σ_A et σ_B .

I.6.4.3 Evaluation de la charge interfaciale

L'évaluation de la charge interfaciale dans une interface se comportant selon la théorie de Maxwell -Wagner. La charge interfaciale est donnée selon les équations (I.25), et (I.26). Si maintenant nous appliquons ces équations à l'interface A-C de la figure (I.13), en obtient :

$$q_{A-C} = \frac{\varepsilon_A \sigma_C - \varepsilon_C \sigma_A}{\sigma_A d_C + \sigma_C d_A} U_{A-C} \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_{MW,A-C}}\right) \right]$$
(I. 31)

$$\tau_{_{MW,A-C}} = \frac{d_A \varepsilon_C + d_C \varepsilon_C}{d_A \sigma_C + d_C \sigma_A}$$
(I. 32)

Supposons que la tension capacitive U_{cc} appliquée est divisée à travers les deux couches de diélectriques A et B, la tension U_{A-C} devient :

$$U_{A-C} \approx U_{A} = \frac{\varepsilon_{B} d_{A}}{\varepsilon_{A} d_{B} + \varepsilon_{B} d_{A}} U_{0}$$
(I. 33)

 U_0 : tension appliquée.

Insérons (I.33) dans (I.31), on a :

$$\sigma_A d_C \ll \sigma_C d_A$$

Et

$\varepsilon_A \sigma_C >> \varepsilon_C \sigma_A$

D'où :

$$q_{A-C} \approx \frac{\varepsilon_A \varepsilon_B}{d_A \varepsilon_B + d_B \varepsilon_A} U_0 \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_{MW, A-C}}\right) \right]$$
(I. 34)

Comme :

$$d_A \varepsilon_C \ll d_C \varepsilon_A$$

La constante du temps $\tau_{MW,A-C}$ peut être exprimée comme :

$$\tau_{_{MW,A-C}} \approx \frac{\varepsilon_{_C}}{\sigma_{_C}}$$

De même pour l'interface C-B, les résultats de la charge interfaciale et la constante de temps sont :

$$q_{B-C} \approx -\frac{\varepsilon_A \varepsilon_B}{d_A \varepsilon_B + d_B \varepsilon_A} U_0 \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_{MW,C-B}}\right) \right]$$
(I. 35)
$$\tau_{MW,C-B} \approx \frac{\varepsilon_C}{\sigma_C}$$
(I. 36)

Selon le modèle présenté, une distribution bipolaire de charge se construit- sur les deux cotés d'une interface. L'importance de cette charge dépend des propriétés du volume des deux diélectriques en contact, tandis que le temps requis pour accumuler la charge bipolaire dépend des propriétés de la couche interfaciale. L'accumulation bipolaire de la charge se produit dans la couche interfaciale au cours de la transition du comportement capacitif au comportement résistif. Ceci est dû au fait que la constante du temps pour l'accumulation bipolaire de charge ($\tau_{MW,A-C}$ ou $\tau_{MW,C-B}$) est beaucoup plus petite que la constante de temps pour l'accumulation conventionnelle de Maxwell –Wagner ($\tau_{MW,A-B}$). En raison de l'accumulation de la charge bipolaire, le champ électrique à travers la couche d'interface diminue fortement. Puisque l'épaisseur de la couche interfaciale est généralement très petite comparée à l'épaisseur du diélectrique, le champ électrique dans le volume d'isolation reste pratiquement inchangé.

Naturellement, avec le temps, la charge additionnelle d'une polarité seulement s'accumulera à l'interface, modifiant le champ électrique dans le diélectrique selon une distribution résistive du champ électrique.

I.6.4.4 La validité des hypothèses

La validité des hypothèses adoptées dans le modèle présenté ci- dessus peut être vérifiée en calculant le champ exact et la charge interfaciale exacte dans un diélectrique de trois couches.

Les équations suivantes régissent le processus d'accumulation de charge dans un diélectrique à trois – couches :

Equation de continuité de charge aux diélectriques discontinus :

$$j_C - j_A = \frac{\partial q_{A-C}}{\partial t} \tag{I. 37}$$

$$j_B - j_C = \frac{\partial q_{C-B}}{\partial t}$$
(I. 38)

$$j_A - j_B = \frac{\partial q_{B-A}}{\partial t} \tag{I. 39}$$

La loi du Gauss aux diélectriques discontinus :

$$q_{A-C} = \varepsilon_A E_A - \varepsilon_C E_C \tag{I. 40}$$

$$q_{C-B} = \varepsilon_C E_C - \varepsilon_B E_B \tag{I.41}$$

$$q_{B-A} = \varepsilon_B E_B - \varepsilon_A E_A \tag{I. 42}$$

La loi d'ohm dans le volume d'isolation :

$$j_i = E_i \sigma_i \tag{I. 43}$$

En combinant les équations (I.37) à (I.43), la relation suivante peut être obtenue :

$$\varepsilon_{A} \frac{\partial E_{A}}{\partial t} + \sigma_{A} E_{A} = \varepsilon_{B} \frac{\partial E_{B}}{\partial t} + \sigma_{B} E_{B} = \varepsilon_{C} \frac{\partial E_{C}}{\partial t} + \sigma_{C} E_{C}$$
(I. 44)

En intégrant (I.44) et en employant (I.45) comme condition limite, le champ électrique peut être calculé pour chaque couche du diélectrique. En tant qu'état initial, nous supposons qu'aucune charge n'est présente au temps t = 0 s, voyons (I.46) :

$$E_{A}d_{A} + E_{B}d_{B} + E_{C}d_{C} = U_{0}$$
 (I. 45)

$$q_i(t=0) = 0$$
 (I. 46)

I.6.4.5 Intérêt de mesure de la charge d'espace

Nous avons vu que les défauts présents dans les isolants électriques à cause de l'accumulation des charges d'espace ont une grande influence sur la répartition du champ électrique et par conséquent sur le fonctionnement des équipements électriques. Nous percevons qu'il est essentiel d'identifier la nature et l'origine de ces défauts afin de prévoir le fonctionnement des systèmes et d'améliorer les procédés de fabrication.

II.1 Introduction

Dans ce chapitre nous présentons les mesures expérimentales effectuées dans notre travail au laboratoire de plasma et conversion d'énergies Laplace, université Paul Sabatier Toulouse.

Dans la section II.2, les différents matériaux utilisés sont décrits.

La section II.3 traite de l'installation du circuit d'essais et du protocole d'essai qui ont été adoptées pour mesurer les charges d'espaces dans des matériaux isolants. La section II.4 traite de la procédure de calibrage. Dans la section II.5, les conditions expérimentales dans lesquelles les mesures ont été effectuées sont données. Ces méthodes expérimentales que nous présentons dans ce chapitre, nous permettent d'évaluer (de quantifier) les phénomènes d'accumulation des charges d'espace se produisant dans les matériaux isolants soumis à des tensions continues. En fait, les mesures de charges d'espace fournissent directement des informations au sujet de la charge qui peut être présente dans l'isolation et la déformation résultant du champ électrique. D'autre part, les résultats des mesures de courant de conduction nous servent comme de base pour le modèle proposé en chapitre V, qui approche les résultats expérimentaux.

II.2 Choix des polymères

Dans notre travail, nous nous sommes intéressés aux polymères utilisés couramment dans l'industrie de fabrication de câble haute tension. La recherche sur les propriétés diélectrique des polymères ne pouvant être effectuée conjointement sur l'ensemble des polymères existants, nous avons dû restreindre notre domaine de recherches à des polymères utilisés couramment dans l'industrie de fabrication des câbles haute tension. Outre le fait qu'il est important du point de vue application de travailler sur des matériaux courants, cela permet d'une part de réduire les coûts de recherche (achat , facilité d'obtention) et d'autre part, de disposer d'une somme d'informations plus importante sur ces polymères. Nous avons donc axé la majorité de notre travail sur le polyéthylène réticulé chimiquement (PRC ou XLPE) dans le chapitre III, le polyéthylène basse densité (LDPE) et le Copolymère d'éthylène Propylène Fluoré FEP dans les chapitres IV et V. En effet, ces choix reposent sur le fait qu'ils soient très utilisés.

II.2.1 Polymères utilisés

a. Polyéthylène réticulé chimiquement XLPE

Les échantillons diélectriques utilisés dans le chapitre III sont des films de polyéthylène réticulé chimiquement (XLPE ou "cross-linked polyéthylène") prélevés directement dans l'isolation d'un câble moyenne tension par l'utilisation d'une technique de "débobinage" de l'isolation massive. On obtient ainsi un ruban de polyéthylène de 8 mm de largeur et 150 μ m d'épaisseur sur une longueur de plusieurs mètres. Un des facteurs importants de l'étude concerne l'état de surface des films. La méthode de

"débobinage" conduit en effet à l'obtention de surfaces présentant des états de rugosité différents (voir tableau II.1).

Ra :	Valeur	movenne	de la	rugosité
ILLE .	, arcar	moyenne	uc iu	I ugobite

Surface ''lisse''	Ra=22.78 nm
Surface "rugueuse"	Ra=291.6 nm

b. Polyéthylène basse densité (LDPE) et Copolymère d'éthylène propylène Fluoré (FEP)

Le polyéthylène basse densité (LDPE) et le Copolymère d'éthylène propylène Fluoré (FEP) ont été fournie par GoodFellow SARL (<u>www.goodfellow.com</u>). Les échantillons achetés se présentent sous la forme de:

Plaques de dimension 300 x 300 mm, d'épaisseur comprise entre 0.1 et 0. 25 mm. Elles sont livrées sous une protection plastifiée.

Tableau II.2 : Données générales sur les caractéristiques du XLPE, LDPE, FEP, SC, Al.

Matériau	permittivité	Conductivité $[\Omega^{-1}.m^{-1}]$ à	La densité	Vitesse du son	Impédance
	ε _r [-]	T=20° et E=20kV/mm	[kg.m ⁻³]	[m.s ⁻¹]	acoustique
					[kg.m ⁻² .s ⁻¹]
XLPE	2.2	$1.11 x 10^{-14}$	900	2000	1.8x10 ⁶
LDPE	2.2-2.3	1.18×10^{-13}	920	2000	1.8x10 ⁶
FEP	2.1	7.078x10 ⁻¹⁶	2150	1700	2.0×10^{6}
Semi con	-	> 1	1100	2300	2.5×10^{6}
Al	-	> 1	2690	6420	17.3×10^{6}

II.2.2 Préparation des échantillons

a. Films de polymères

Ce sont des films de polyéthylène réticulé chimiquement (XLPE), de polyéthylène basse densité (LDPE) et de Copolymère d'éthylène propylène Fluoré (FEP) avec des épaisseurs comprises entre 0.1 et 0.25mm.

b. Nettoyage

Avant chaque manipulation concernant la mesure de courant de conduction ou la de mesure des charges d'espace, (voir chapitres III, IV) l'échantillon est nettoyé avec de l'éthanol puis ensuite séché et disposé tel quel pour les essais expérimentaux.

c. La métallisation

Pour étudier l'effet des électrodes (Or), la métallisation des échantillons par l'or se fait par dépôt plasma sous vide, les métallisations ont un diamètre de 3 cm pour un épaisseur de 30nm,
d. Semi conducteur

Pour étudier l'effet des électrodes semi conductrices (SC), on utilise des semi conducteurs à base du polyéthylène chargé par le noir du carbone avec des épaisseurs comprises entre 0.05 et 0.1mm. Sa conductivité est en général de l'ordre de $0.8 \ S.cm^1$.

e. Position de mesure

Les combinaisons des couches diélectriques sont obtenues en mettant deux couches de même nature (XLPE / XLPE) ou deux couches différentes (LDPE / FEP) ou (FEP / LDPE). Aucun lubrifiant ou traitement spécifique n'a été appliqué à l'interface entre les deux couches, les deux couches sont alors physiquement serrées par application d'une forte pression mécanique.



Figure II.1. Exemple des échantillons utilisés dans nos mesures (a) film de XLPE métallisé par l'or (b) deux couches de XLPE, (c) deux couches LDPE / FEP.

II.3 Les mesures réalisées

II.3.1 La méthode électroacoustique pulsée

a-Introduction

La méthode électro acoustique pulsée appelée Pulsed Electro-Acoustic, PEA en anglais, consiste en la détection des ondes acoustiques générées par la charge d'espace sous l'effet coulombien d'une impulsion de champ électrique appliqué. Cette méthode permet ainsi d'établir une distribution de la charge d'espace en fonction de la profondeur de l'échantillon.

Cette méthode a été mise au point au Japon par Maeno et Takada [25-26-27] en 1987.

Le principe de la méthode est de mesurer les ondes acoustiques créées par les charges d'espace lorsque celles –ci sont soumises à une impulsion de champ électrique.

En effet, l'application d'une impulsion électrique sur une charge, vient provoquer, par l'effet 'coulombien ' un déplacement transitoire des charges d'espace autour de sa position d'équilibre. Une onde de pression, d'amplitude proportionnelle à la quantité de charges, est alors générée et se propage alors à la vitesse du son dans l'échantillon. Cette onde est ensuite convertie par un capteur piézoélectrique et un traitement numérique adéquat est alors appliqué sur le signal de la tension délivrée par le capteur pour établir une distribution de la charge d'espace en fonction de la profondeur de l'échantillon.



Figure II.2. Principe de la méthode PEA.

b- Analyse théorique de la PEA

Une charge q placée dans un champ électrique \ddot{e} , ici, un champ impulsionnelle, est soumis à une force de type Coulombien telle que :

$$\ddot{f} = q.\ddot{e}$$
 (II.1)

Notons e(t) le champ impulsionnel suivant la direction x.

La force élémentaire à l'abscisse x qui agit sur un volume S. dx contenant une densité de charge ρ est donc :

$$f_{\Delta}(x,t) = \rho(x)dxS.e(t) \tag{II.2}$$

Si l'on s'intéresse à la pression élémentaire, il nous suffit de diviser f par la surface S :

$$dp_{\Delta}(x,t) = \frac{\partial f_{\Delta}(x,t)}{S} = \rho(x).dx.e(t)$$
(II.3)

En notant v_p la vitesse de propagation du son dans l'échantillon et v_e celle dans l'électrode inférieure (en aluminium), et en ramenant cette pression au niveau du capteur piézoélectrique, nous obtenons l'équation suivante (l est l'épaisseur de l'électrode inférieure) :

$$p_{\Delta}(x,t) = \rho(x).e(t - \frac{l}{v_e} - \frac{x}{v_p}).dx$$
(II.4)

En posant $\tau = x/v_p \implies dx = v_p d\tau$ et $\rho(x) = \rho(\tau v_p) = r(\tau)$,

La pression générée sur le capteur par l'ensemble des couches élémentaires s'obtient ensuite par l'ensemble des couches élémentaires d'épaisseur dx est égale à :

$$p(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} p_{\Delta}(x,t) = v_p \int_{-\infty}^{+\infty} e(t - \frac{l}{v_e} - \tau) r(\tau) d\tau$$
(II.5)

Cette forme étant celle d'une convolution, on simplifiera son écriture en la transposant dans l'espace des fréquences par :

$$P(\mathbf{v}) = F[p(t)] = v_p \cdot R(\mathbf{v}) \cdot E(\mathbf{v}) \cdot \exp(-2i\pi f \frac{l}{v_e})$$
(II.6)

Enfin, en notant $v_s(t)$ le signal mesuré issu du capteur piézoélectrique et H(v) la fonction de transfert du système, nous pouvons écrire dans l'espace des fréquences :

$$V_s(\mathbf{v}) = H(\mathbf{v}).P(\mathbf{v}) \tag{II.7}$$

Où H(v) la fonction de transfert caractéristique du piézoélectrique, à cet instant de notre raisonnement, une seule inconnue reste à éliminer : H(v), afin de déterminer R(v).

c- Procédure de référence

Cette procédure de référence (calibration) a pour rôle d'éliminer l'inconnue H(v) qui représente la fonction de transfert de l'entrée du capteur à l'entrée d'acquisition numérique. Pour cela, il consiste à effectuer une mesure sur un échantillon vierge en lui appliquant une contrainte électrique continue de faible amplitude (E ≤ 1 kV/mm). Il est alors trivial de prévoir la densité surfacique de charge par électrode.

$$\sigma_1 = \frac{\varepsilon_1 U}{d} = \varepsilon_1 E \tag{II.8}$$

où l'indice «1 » caractérise les paramètres de calibration.

La pression engendrée par cette charge capacitive au niveau du capteur est donc égale à :

$$p_1(t) = \sigma_1 \cdot e(t - \frac{l}{v_e}) \implies F[p_1(t)] = p_1(v) = \sigma_1 \cdot E(v) \cdot \exp[-2i\pi f \frac{l}{v_e}]$$
(II.9)

Soit, dans l'espace des fréquences :

$$P_{1}(\mathbf{v}) = F[p_{1}(t)] = \sigma_{1}.E(\mathbf{v}).\exp(-2i\pi f \frac{l}{v_{e}})$$
(II.10)

Et de plus :

$$V_{s1}(v) = H(v).P_1(v)$$
 (II.11)

En combinant les équations (II.6), (II.7), (II.8), (II.10), (II.11) :

$$R(\mathbf{v}) = \frac{\sigma_1}{v_p} \cdot \frac{V_s(\mathbf{v})}{V_{s1}(\mathbf{v})}$$
(II.12)

Démonstration :

$$R(\mathbf{v}) = \frac{P(\mathbf{v})}{\mathbf{v}_{p}.E(\mathbf{v}).\exp[-2i\pi\mathbf{v}.\frac{l}{\mathbf{v}_{p}}]}$$
(II.13)

$$P(\mathbf{v}) = \frac{V_s(\mathbf{v})}{H(\mathbf{v})} \tag{II.14}$$

$$H(v) = \frac{V_{s1}(v)}{P_1(v)}$$
(II.15)

$$H(v) = \frac{V_{s1}(v)}{\sigma_1 . E(v) . \exp[-2i\pi . \frac{l}{v_e}]}$$
(II.16)

$$P(v) = \frac{V_s}{V_{s1}} \cdot \sigma_1 \cdot E(v) \cdot \exp[-2i\pi \cdot \frac{l}{v_e}]$$
(II.17)

Les expressions (II.6), (II.7), (II.8), (II.9), (II.13), et (II.17) nous permettent de lever l'indétermination et nous obtenons l'équation de la méthode PEA :

$$R(\mathbf{v}) = \frac{V_s}{V_{s1}} \frac{\sigma_1}{v_p} \cdot \frac{E(\mathbf{v}) \cdot \exp[-2i\pi \cdot \frac{V_e}{v_e}]}{E(\mathbf{v}) \cdot \exp[-2i\pi \cdot \frac{l}{v_e}]}$$
(II.18)

On obtient :

$$\rho(x) = F^{-1} \left[R(\mathbf{v}) \right] = F^{-1} \left[\frac{\varepsilon_1 U}{v_p d_1} \cdot \frac{V_s(\mathbf{v})}{V_{s1}(\mathbf{v})} \right]$$
(II.19)

Pour arriver à ce résultat, différentes hypothèses ont été posées :

- les forces électrostrictives engendrées par les impulsions sont négligeables devant les autres forces $1/2 E_p \ll E_{dc}$. Avec E_p : le champ impulsionnel, et E_{dc} : le champ continue appliquée.
- les ondes se propagent dans un milieu parfaitement élastique (on néglige la dispersion et l'atténuation).
- les propriétés de conversion du capteur piézoélectrique sont identiques à chaque mesure.
- Si l'on s'intéresse à présent au champ électrique et à la tension, ils pourront être déduits conformément à la relation de Maxwell-Gauss suivante :

$$div \ddot{E} = \frac{\rho}{\epsilon} \implies E(x') = \frac{1}{\epsilon} \int_{-\infty}^{x'} \rho(x) dx$$
 (II.20)

$$\ddot{E} = -\overrightarrow{grad} V \implies V(x') = -\int_{-\infty}^{x'} E_x(x) dx$$
(II.21)

II.3.2 Le dispositif électro-acoustique pulsé

Le dispositif électro-acoustique pulsé utilisé est un dispositif classique disponible au laboratoire de plasma et conversion d'énergie (Laplace) Figure II.3.a. Les signaux acoustiques générés par le mouvement des charges soumises aux impulsions électriques (via le générateur d'impulsions qui délivre des impulsions d'une durée de 10 ns, d'amplitudes réglables pouvant atteindre 1 kV et de fréquence 50 Hz) se propagent à travers l'électrode connectée à la masse (son épaisseur sert de ligne à retard pour la propagation des ondes acoustiques), atteignent le capteur piézoélectrique, et sont finalement atténuées par une impédance acoustique. Cette dernière a pour effet de limiter les réflexions. Le signal, ainsi délivré par le système d'amplificateur est ensuite transféré vers un oscilloscope numérique Lecroy LT374L (vitesse d'échantillonnage de 4GS/s, bande passante de 500MHz, profondeur de mémoire de 16Mb) afin d'être traité. L'échantillon est alimenté par un générateur haute tension (jusqu'à 30 kV) qui est nécessaire pour effectuer le calibrage et sert également à polariser le matériau. Les deux alimentations (générateurs d'impulsions et d'alimentation est relié à l'électrode supérieure par l'intermédiaire d'une résistance de limitation du courant. Le générateur d'impulsions est connecté via une capacité de découplage.

Les électrodes de mesure du système sont constituées par l'électrode massive d'aluminium du côté de la détection acoustique par capteur piézoélectrique et d'une électrode semi-conductrice (mélange de polyéthylène et de noir de carbone) pour l'électrode connectée à la haute tension (qui assure aussi une bonne adaptation acoustique avec l'échantillon).

D'une manière générale, le dispositif de mesure est adapté aux échantillons ayant une épaisseur comprise entre 100 μ m et 500 μ m. Sa sensibilité est de l'ordre de 0.1 C/m³ et sa résolution spatiale de l'ordre de 10 μ m.



Figure II.3 .a. Schéma du banc expérimental de la méthode PEA classique.



Figure II.3 .b. Photo du banc de manipulation PEA.

Photo PEA



PEA adaptée pour des films d'épaisseurs (d<1mm)

Capteur	piézoélectrique	PVDF,	9µm,
S	$=0.5 \text{ cm}^2$		
Génératri	ce d'impulsion : am	plitude 300 –	1.5 kV
réglable.			
Fréquenc	e 40 HZ – 1 kHz rég	lable	
Largeur o	l'impulsion 5ns		
Tempéra	ture Max: 7	0°C	

Figure II.3 .c. Photo de la cellule PEA.

II.3.3 Interprétations du signal de la charge d'espace dans les différentes combinaisons diélectriques

Dans la méthode de PEA, une tension impulsionnelle, qui est superposée à la tension continue U_0 , est appliquée à travers un échantillon. Ceci mène à une modification de la distribution de la force électrostatique agissant sur l'échantillon et en conséquence des vagues de pression sont produites. Ces vagues sont détectées par un senseur après déplacement par l'échantillon et par l'électrode terre.

Dans cette section nous étudions la génération, la transmission et la réflexion des ondes acoustiques, la configuration de la figure (II.4) se compose de deux matériaux isolants A, et B placés entre l'électrode -1, qui est reliée à la haute tension (HT), et l'électrode -2 qui est reliée à la terre.



Figure II.4. Ondes acoustiques produites à l'endroit des différents échantillons

- 1- $P_{e_{2}-A}$: interface électrode -2/ diélectrique- A.
- 2- P_{ρ_A} : l'endroit de la charge d'espace ρ_A .
- 3- $P_{K_{A-B}}$: endroit de la charge extérieure K_{A-B} .
- $4 P_{\rho_B}$: l'endroit de la charge d'espace ρ_B .
- 5- P_{B-e_1} : interface diélectrique –B/ électrode -1.

a-Génération

Il y a plusieurs endroits dans l'échantillon où une vague de pression peut être produite. Puisque les charges de polarisation sont présentes aux électrodes, les pressions P_{e2-A} , P_{B-e1} sont prévues respectivement à la frontière de l'électrode-2/ diélectrique -A et à la frontière diélectrique -B/électrode-1.

Si les constantes diélectriques ε_A et ε_B des matériaux A et B sont différentes, la vague de pression P_{A-B} est lancée à la frontière entre le matériau A et le matériau B. Ceci se produit indépendamment de la présence de la charge d'espace. Cependant, si la charge d'espace est présente dans l'échantillon, les ondes acoustiques sont produites à l'endroit de la charge d'espace (P_{ρ_A} et P_{ρ_B} à la figure II.4). En conclusion si la charge extérieure ρ_{A-B} s'accumule à l'interface entre les deux couches de l'isolant, une vague de pression $P_{K_{A-B}}$ est produite .L'importance des différentes vagues de pression peut être déduite comme expliqué dans [28].

Le champ pulsé dû à la tension $U_{\text{pulsé}}$ est capacitif distribué à travers l'échantillon multicouche :

$$e_{A,puls\acute{e}} = \frac{\varepsilon_{rB}}{\varepsilon_{rA}.d_B + \varepsilon_{rB}.d_A}.U_{puls\acute{e}}$$
(II.22)

$$e_{B,puls\acute{e}} = \frac{\varepsilon_{rA}}{\varepsilon_{rA}.d_B + \varepsilon_{rB}.d_A}.U_{puls\acute{e}}$$
(II.23)

Dans la méthode de PEA, le signal de la charge d'espace est proportionnel au champ pulsé.

b-Transmission

Récemment, quelques combinaisons de matériaux avec les propriétés acoustiques tout à fait différentes ont été étudiées au moyen de la technique PEA [29-30]. Par conséquent, le déplacement des ondes acoustiques dans les échantillons multicouches représente un secteur d'intérêt croissant [31-32-33]. Après sa génération la vague de pression voyage dans les deux directions de l'électrode 1 et de l'électrode 2. Cependant, seulement les vagues qui voyagent vers l'électrode 2 sont détectées par le capteur. Les vagues voyageant vers l'électrode 1 n'atteignent pas la sonde, à moins quelle soient réfléchies dans la deuxième couche, ceci sera discuté plus tard.

La propagation des vagues est liée par l'impédance acoustique du matériau qui est définie par :

$$Z_i = \delta_i v_i \tag{II.24}$$

OÙ δ_i est la densité de masse du milieu et v_i la vitesse du son dans le milieu. Vu les vagues voyagent dans l'échantillon en tant que vagues planaires, le coefficient de génération G, le coefficient de transmission T et le coefficient de réflexion R peuvent être calculés [34].

$$G_{i-j} = \frac{Z_j}{Z_i + Z_j} \tag{II.25}$$

$$T_{i-j} = \frac{2.Z_j}{Z_i + Z_j} \tag{II.26}$$

$$R_{i-j} = \frac{Z_i - Z_j}{Z_i + Z_j} \tag{II.27}$$

Là où l'indice 'i' identifie le milieu lequel la vague vient, alors que l'indice 'j' identifie le milieu vers lequel la vague voyage. Dans la situation représentée dans la figure II.4, la vague de pression P'_{e_2-A} qui est la fraction de P_{e_2-A} , peut être calculée comme suit :

$$P'_{e_2-A} = G_{A-e_2} \cdot P_{e_2-A} \tag{II.28}$$

Des expressions semblables peuvent être déterminées pour P'_{A-B} et P'_{B-e_1} , qui sont respectivement la fraction de déplacement dans l'électrode -2 P_{A-B} et P_{B-e_1} .

$$P_{A-B}' = G_{B-A} T_{A-e_2} P_{A-B}$$
(II.29)

$$P'_{B-e_1} = G_{e_1-B} \cdot T_{B-A} \cdot T_{A-e_1} \cdot P_{B-e_1}$$
(II.30)

En ce qui concerne l'onde acoustique aux charges d'espace ρ_A et ρ_B dans les diélectriques A et B, les vagues de pression P'_{ρ_A} et P'_{ρ_B} voyagent de l'endroit de la charge d'espace vers l'électrode -2.

$$P_{\rho_A}' = \frac{1}{2} . T_{A-e_2} . P_{\rho_B}$$
(II.31)

$$P_{\rho_B}' = \frac{1}{2} . T_{B-A} T_{A-e_2} . P_{\rho_B}$$
(II.32)

Le coefficient $\frac{1}{2}$ est une conséquence directe de l'équation (II.25). En conclusion, la contribution acoustique de la charge extérieure ρ_{A-B} à la frontière entre A et B est :

$$P_{K_{A-B}}' = G_{B-A} \cdot T_{A-e_2} \cdot P_{K_{A-B}}$$
(II.33)

Les coefficients acoustiques présentés précédemment sont définis en cas d'interface parfaitement liée entre deux milieux. Cependant, les matériaux isolants ont une rugosité extérieure finie. Par conséquent, l'interface peut être modélisée comme couche mince dont l'épaisseur dépend principalement de la rugosité extérieure des deux couches en contact.

c- Réflexion

Si Z_A et Z_B sont les impédances acoustiques des matériaux A et B dans la figure II.5, la non – adaptation acoustique se produit si $Z_A \neq Z_B$. Dans ce cas, le coefficient de réflexion défini par l'équation (II.27) prend une valeur différente de zéro pour toutes les vagues passant l'interface A/B. Puis, on prévoit des vagues réfléchies qui pourraient recouvrir les vagues représentatives pour la distribution de pression après l'interface de l'échantillon.



Figure II.5. Réflexion des ondes acoustiques à la frontière entre deux matériaux différents composant l'échantillon multicouches.

 P'_{ρ_p} : vague produite à l'électrode -1.

 P_{e_1-A}'' : vague produite à l'électrode -2 et réfléchi à l'interface diélectrique/ diélectrique.

 P_{ρ_A}'' : vague produite au diélectrique (A) et réfléchi à l'interface diélectrique/ diélectrique.

 P_{e_2-A} : vague incidente produite à l'électrode -2.

Dans le cas présenté à la figure II.5, la vague de pression P_{e-A}'' et P_{p_A}'' .

$$P_{e_2-A}'' = G_{e_2-A} \cdot R_{A-B} \cdot T_{A-e_2} \cdot P_{e_2-A}$$
(II.34)

Simultanément P''_{ρ_A} résultante :

$$P_{\rho_A}'' = \frac{1}{2} \cdot R_{A-B} \cdot T_{A-e_2} \cdot P_{e_2-A}$$
(II.35)

Cependant, ces ondes acoustiques n'influent pas sur le signal de la charge si elles sont détectées par le capteur après l'arrivée de l'onde P'_{ρ_B} (vague produite à l'électrode -1. Puis, aucun recouvrement ne se produit si les conditions suivantes sont remplies :

$$\frac{d_A}{v_A} > \frac{d_B}{v_B}$$
(II.36)

$$\frac{d_A - d_{\rho_A}}{v_A} > \frac{d_B}{v_B} \tag{II.37}$$

Où d_A et d_B sont les épaisseurs de A et B tandis que d_{ρ_A} est la distance entre l'électrode -1 et l'endroit de la charge d'espace.

II.4 Procédure de calibration

a. Echantillon homogène plat

Pour convertir un signal traité de forme d'onde $V_s(t)$ à un profil de charge d'espace $\rho(t)$, un facteur de calibrage est défini par :

$$K_{cal} = \frac{V_{signal}(t)}{\rho(t)}$$
(II.38)

Habituellement le calcul du facteur de calibrage se base sur la connaissance de la charge à l'électrode terre. Afin de vérifier si le calibrage est correctement fait , la distribution du champ électrique E(x) à travers l'échantillon peut être fournie au moyen de l'équation suivante :

$$E(x) = \frac{1}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} \int_0^d \rho(x) dx$$
(II.39)

Si le calibrage est correct, la distribution de la tension à travers de l'échantillon, V(x) doit résulter de :

$$V(x) = -\int_{0}^{d} E(x)dx \tag{II.40}$$

Là ou x = v t (v est la vitesse du son dans l'échantillon) et d l'épaisseur d'échantillon.

b. Echantillon multi diélectrique plat

Quand un multi diélectrique est examiné, la même quantité de charge dans les deux couches produira une vague de pression avec une amplitude plus élevée dans la couche avec la constante diélectrique inférieure [35]. C'est une conséquence directe de l'équation A15 [30]. Puis le facteur de calibrage ne peut pas être le même pour les deux couches du multi diélectrique

Par conséquent, pour convertir le signal de la tension mesurée V_s (t) au signal de la charge, le facteur de calibrage K_{cal} , est défini comme :

$$K_{cal} = \frac{V_{signal}(t)}{\rho(t)}$$
(II.41)

Ce facteur de calibrage K_{cal} ne pas être le même pour les deux couches. Le facteur de calibrage K_{cal} de l'équation déduit de la charge à la frontière de l'électrode terre / diélectrique –A devrait être employé pour l'évaluation de la charge d'espace dans le diélectrique A. D'autre part, la charge d'espace dans le diélectrique B qui est relié à l'électrode HT devrait être évaluée selon le facteur de calibrage $K_{B,cal}$:

$$K_{B,cal} = K_{A,cal} \cdot \frac{e_{B,puls\acute{e}}}{e_{A,puls\acute{e}}} = K_{A,cal} \cdot \frac{\varepsilon_{rA}}{\varepsilon_{rB}}$$
(II.42)

Le procédé de calibrage est généralement basé sur la connaissance de la charge d'électrode.

En cas d'échantillons multicouches, les charges des électrodes sont connues si la tension U_0 appliquée à l'échantillon est une tension capacitive. Si U_0 est une tension continue CC, la transition du champ capacitif à un champ résistif évalué se produit à temps. Puis comme suggéré dans [36], la mesure de calibrage doit être accomplie longtemps avant que cette transition devienne importance.

La distribution du champ électrique à travers le multi diélectrique peut être fournie au moyen de l'équation II.39, dans laquelle la constante diélectrique relative doit être considéré en fonction de la distance.

L'équation II.40, peut être employée pour déterminer la distribution de la tension à travers le multi diélectrique.

Dans les figures (II.6), (II.7), un exemple de calibrage suit présente la distribution de la charge d'espace, du champ électrique et la distribution de la tension à travers un diélectrique homogène et un multi diélectrique non homogène.



c. Polarisation sous une tension positive

Figure II.6. Calibrage d'une distribution des charges d'espaces (a), distribution du champ électrique (b) distribution de la tension (c)





Figure II.7. Calibrage d'une distribution des charges d'espaces (a), distribution du champ électrique (b) distribution de la tension (c)

II.5 Les conditions électriques et thermiques

Pendant les mesures effectuées les matériaux diélectriques sont soumis à plusieurs distributions du champ électrique. Par exemple, la distribution du champ électrique à travers le diélectrique est différente si la tension a été juste appliquée ou s'il est présent pendant plusieurs heures. Dans le travail actuel, les essais expérimentaux ont été effectués sous plusieurs conditions électriques. Des tensions continues seulement ont été utilisées : ni l'impulsion ni les tensions alternatives n'ont été prises en considération. Pour cette raison, nous avons adoptée les conditions suivantes:

- Echantillons soumis à un champ électrique moyen U₀/d entre 14 kV/mm et 35 kV/mm.
- Polarité de tension : des tensions positives et négatives ont été appliquées aux échantillons testés .D'ailleurs, dans certains essais, l'état d'inversion de la polarité était inclus.
- Temps de polarisation : généralement, un temps de polarisation appliquée est de 3600 sec (1 heure). Cependant dans certains essais, la tension a été appliquée pendant un temps beaucoup plus long, jusqu'à 1x10⁴ ≈ 4 heures
- Pour le temps de dépolarisation, généralement un temps compris entre 180 s et 3600 s a été utilisé. Cependant, certains essais ont duré pendant un temps de dépolarisation beaucoup long jusqu'à 10¹⁵ s (12 jours) pour avoir un dépiégeage complet des charges, afin dévaluer les profondeurs des pièges.
- Les conditions d'injection des charges couvrent une gamme de température entre 20° C et 60°
 C, Une modification du protocole de la température a été utilisée pour étudier l'effet de la température sur le mouvement des porteurs des charges.

III.1 Introduction

Les matériaux isolants thermoplastiques type polyéthylène sont de plus en plus utilisés dans le domaine du Génie Electrique et de la haute tension. Ils présentent en effet d'excellentes propriétés d'isolation, sont inertes chimiquement et peuvent être moulés ou extrudés afin de satisfaire des géométries complexes [1]. Le terme polyéthylène est un terme générique qui désigne en fait des isolants de formulation différente soit par la résine de base (type de polyéthylène, chimiquement modifié ou non, réticulé ou non), soit par la nature des additifs (antioxydants, autres additifs [37]). Les polyéthylènes sont des isolants de choix pour les câbles haute tension enterrés ou sous-marins dans lesquels ils remplacent les isolations papier imprégné d'huile, pour des raisons d'ordre environnemental et de maintenance (suppression des réserves de liquide diélectrique). Cependant, plusieurs facteurs limitent encore leur utilisation pour des applications sous tension continue. Des charges électriques peuvent en effet être injectées aux interfaces électrode/polymère, ou créées dans le volume par électro-dissociation d'espèces chimiques. De part la nature diélectrique et isolante du milieu, ces charges sont piégées aux interfaces ou en volume ce qui conduit à une modification de la distribution du champ électrique localement, surtout lorsque des inversions de polarité sont nécessaires au fonctionnement de la liaison, des intensifications du champ peuvent soit amorcer des réactions de dégradation, soit provoquer la rupture diélectrique immédiate dans les cas les plus critiques [38]. Un autre élément est à prendre en considération: compte tenu de la longueur des liaisons d'énergie, des jonctions sont nécessaires entre les tronçons de câble. Elles constituent un point faible du système en termes de fiabilité puisque des interfaces diélectrique/diélectrique sont présentes [39-40]. L'objectif de notre travail est de caractériser la distribution spatio-temporelle des charges d'espace qui apparaissent aux interfaces métal / diélectrique et diélectrique/ diélectrique sous tension continue par une mesure directe en fonction des contraintes et du temps, en phase de polarisation et de dépolarisation, par l'utilisation de la technique électro-acoustique pulsée.

Les interfaces, quelle que soit leur nature (métal/diélectrique ou diélectrique/diélectrique) jouent un rôle fondamental dans la dynamique des charges d'espace puisqu'elles présentent des propriétés diélectriques spécifiques par rapport au volume, car les atomes au voisinage de l'interface sont dans un environnement physique, chimique et dimensionnel différent de celui du volume.

Dans le cas des interfaces métal/diélectrique, on considère en général que les charges peuvent être extraites ou injectées en fonction des métaux d'électrodes et de la nature des interfaces [41-42].Cependant, une description correcte d'injection de charge d'un métal dans l'isolation utilisant les lois classiques d'injection (émission de Schottky par exemple) n'existe pas aujourd'hui [43-44]. Dans le cas d'une interface diélectrique/diélectrique, la théorie prévoit que la densité de charge interfaciale σ est déterminée par la formulation de Maxwell-Wagner-Sillars [45] qui peut être écrite comme :

$$\sigma = \left(\varepsilon_2 - \varepsilon_1 \frac{\gamma_2}{\gamma_1}\right) E_2 = \left(\varepsilon_2 \frac{\gamma_1}{\gamma_2} - \varepsilon_1\right) E_1$$
(III.1)

Où $\gamma_i, \varepsilon_i, E_i$: représentent respectivement les conductivités, constantes diélectriques et champs électriques dans les milieux (1) et (2). Lorsque les deux matériaux sont identiques la densité de charge à l'interface devrait être zéro (en l'absence d'accumulation de charge perturbant la distribution interne du champ électrique). Cependant, mêmes ces interfaces "physiques" ne sont pas des interfaces parfaites puisque constituées par la mise en contact de deux films. On peut donc penser que seront introduits des piéges, en particulier en raison de la nature faible du couplage entre films (pas de liaisons chimiques) : des chaines cassées, pliées, et les bulles d'aires [46] Ce sont ces effets que nous souhaitons mettre en évidence. Le comportement électrique d'un échantillon constitué par l'association de deux diélectriques peut donc dévier de la prévision théorique de Maxwell-Wagner-Sillars d'autant plus que les charges d'espace dues à l'injection de charge ou à la génération de charge interne deviennent influentes [47]. Dans ce cas, la quantité de charge d'espace décrite par l'équation (III.1) peut être sensiblement plus petite que l'accumulation de charges à l'interface due au transport de charge.

L'analyse de la littérature montre que des mesures directes de charges d'espace ont été effectués pour étudier le comportement des charges aux interfaces métal/diélectrique et diélectrique/diélectrique en utilisant la technique électro-acoustique pulsée (PEA) [44-47-48-53]. Le travail de G. Chen [48] par exemple a prouvé que les interfaces entre deux couches de polyéthylène de faible densité piègent les électrons mais pas les trous (l'absence d'un électron, définie de cette façon afin de différencier les porteurs électroniques et ioniques). Notre objectif dans cette étude est d'étudier la distribution spatiale dépendant du temps des charges d'espace aux interfaces métal/ diélectrique et diélectrique/diélectrique soumises à une tension continue par l'utilisation de la méthode électroacoustique pulsée.

III.2 Matériaux et dispositifs expérimentaux

III.2.1 Caractéristique des échantillons

Des épluchages de polyéthylène réticulé de la série décrite dans la référence [54] ont été employés pour cette étude. Ils ont été épluchés d'un câble moyenne tension (63/90 kV) ayant une isolation épaisse de 14 millimètres en utilisant un tour équipé d'un couteau conçu spécialement. Ils ont une largeur nominale de 8 millimètres et une épaisseur 150 µm, et ont été traités thermiquement à une température de 50° C afin de se débarrasser des sous-produits des réactions de réticulation [55]. Des investigations ont été faites sur l'état de surface des épluchages puisque celui-ci pourrait affecter les mesures. En raison du procédé de découpage, les surfaces ne sont pas lisses comme si le spécimen avait été préparé par compression - moulage. Les mesures utilisant un microscope atomique de force (AFM) ont indiqué que les deux

surfaces des épluchages ont une rugosité différente. Les hauteurs typiques maximum de crête-à-creux ont été mesurées et la valeur efficace de la rugosité a été estimée comme indiqué dans le tableau III.1. On a vérifié que la différence de rugosité de surface n'affecte pas l'injection de charge ni son stockage jusqu'à une valeur de champ de l'ordre de 40 kV/mm. Une pleine caractérisation des caractéristiques physiques, chimiques et électriques des échantillons peut être trouvée dans [54].

Tableau III.1 : Mesures atomiques de microscopie de force de la rugosité des visages de peau

FACE DE	VALEUR TYPIQUE DE	VALEUR MAXIMALE DE LA	VALEUR
L'ECHANTIL	LA DISTANCE CRETE A	DISTANCE CRETE A CREUX	EFFICACE DE LA
LON	CREUX (µM)	(μΜ)	RUGOSITE (NM)
LA PLUS	~0.3	~1	~150
LISSE			
LA MOINS	~1	~2	~350
LISSE			

III.2.2 L'échantillon utilisé avec différents matériaux d'électrodes

L'échantillon utilisé dans cette étude est du polyéthylène réticulé (XLPE) avec l'électrode SC comme anode et Al comme cathode. Dans ce cas, ce sont les électrodes du dispositif PEA qui sont utilisées (électrodes massives), l'échantillon étant pris en sandwich entre ces deux électrodes. Dans le cas des électrodes en or, on utilise un technique de dépôt par pulvérisation.

Le volume isolant a été pris d'un câble industriel non vieilli (AR6), tandis que le semi conducteur fait partie de la même catégorie du matériau polymère, mais a été chargée avec le noir de carbone pour augmenter la conductivité. L'épaisseur du semi-conducteur est 0.8 mm, alors que celle du XLPE est d'environ 0.15 mm.

Note: les échantillons utilisés dans notre étude ne sont pas pré polarisés, pour chaque essai on a utilisé des échantillons vierge.

III.3 Protocole de mesure

L'influence de la nature de l'interface électrode/diélectrique sur la charge accumulée a été étudiée en utilisant des échantillons avec les systèmes symétriques et asymétriques d'électrode. Des structures d'Or/XLPE/Or et de SC/XLPE/SC ont été préparées en pulvérisant l'or des deux côtés du film isolant et en serrant deux électrodes semi-conductrices en contact avec le film, respectivement. La structure d'Al/XLPE/SC correspond à la configuration habituelle de mesure de PEA. Un champ de 31 kV/mm a été appliqué aux échantillons pendant 5 minutes. Des mesures de PEA ont été effectuées pendant la polarisation et dans des conditions de court-circuit où l'accumulation de charge est souvent plus visible puisque non masquée par la valeur élevée de la charge capacitive pendant l'application de tension. À ce niveau de champ, l'injection de charge est connue pour dominer l'accumulation de charge dans le XLPE dès lors que l'on a éliminé les sous-produits des réactions de réticulation (une hétérocharge est habituellement observée dans le XLPE en présence des sous-produits contre une homocharge après traitement thermique (voir la référence [47] par exemple). D'ailleurs, l'accumulation de charges d'espace dans un échantillon résulte toujours de trois étapes de processus; génération de charge, transport et extraction. Nous avons donc choisi un temps de polarisation de 5 minutes afin de réduire le transport de charge. Dans telles conditions, la charge accumulée décrit l'injection de charge. Les phénomènes de dépolarisation ont été suivis sur 30 min.

III.4 Résultats et discussion

Les distributions de la charge en polarisation et dépolarisation sont montrées aux figures III.1 à 4 pour les trois arrangements de différentes d'électrode : électrodes SC, Al, Or (où le film XLPE métallisé en deux faces).

La polarisation sous 5 kV (31 kV/mm) pendant 5 min, et la dépolarisation pendent 30min: La configuration de mesure a été choisi comme Al cathode / XLPE/ SC anode.



Figure III. 1. Profil de charge d'espace: (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation



Figure III.2. Profil de charge d'espace : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation



Figure III.3. Profil de charge d'espace : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation

La configuration de mesure a été choisi comme Al anode / XLPE/ SC cathode.



Figure III. 4. Profil de charge d'espace: (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation

En raison du peu de charges injectées (de l'ordre du [C.m-³][,] le profil en polarisation ne démontre pas clairement la charge d'espace due à la prédominance de la charge capacitive sur les électrodes .La charge d'espace est visible pendant la dépolarisation. Les commentaires suivants peuvent être faits :

- structure d'Or/XLPE/Or (voir figure III.1) : des charges négatives sont injectées de la cathode et s'accumulent jusqu'à 50 µm de cette électrode. Il y a un peu d'injection positive de l'anode.

- SC/XLPE/SC (voir figure III.2) : des charges négatives sont injectées de la cathode et s'accumulent jusqu'à l'anode formant une couche d'hétéro charge. Il n'y a aucune évidence d'injection positive de charge de l'anode, bien qu'elle pourrait être cachée par la charge négative.

- Al/XLPE/SC (voir figure III.3) : quand la cathode en Aluminium, la charge négative est détectée jusqu'à l'anode formant une couche d'hétéro charge. Quand l'anode en Aluminium, on observe deux domaines d'homo charge à proximité des deux électrodes (voir figure III.4).

Une quantification de la charge d'espace négative q(t) qui s'est accumulée dans le volume à t=5 minutes (fin de la phase de polarisation) et pendant la dépolarisation a été faite en intégrant la valeur de la charge mesuréee q(t) dans un épaisseur d'isolation finie, comme suit :

$$q(t) = \frac{1}{L} \int_{0}^{L} \left| q_{p}(x, t) dx \right|$$
(III.2)

où 0 dénote la position de la cathode et L la distance de pénétration de la charge négative. Les charges induites ou capacitives aux électrodes ne sont pas prises en considération.

Les résultats sont montrés à la figure III.5.

En ce qui concerne l'injection électronique, les résultats donnent le rang suivant parmi différentes électrodes : SC > Al > Or. En ce qui concerne l'injection de trous, le rang est comme suit : Al> Or Quant à l'électrode de SC, il n'était pas possible de conclure en raison de la prédominance de la charge négative qui peut cacher l'injection positive. Cependant, on peut noter que SC(-) est beaucoup plus injectant pour les électrons que SC(+) ne l'est pour les trous. De plus, on voit bien que les électrodes d'Or injectent faiblement, mais peuvent injecter des électrons et des trous. Ceci a été rapporté dans plusieurs publications [48] et pourrait être en relation avec la valeur élevée du travail de sortie de l'or (4.7 eV-[49]) dans l'espace de bande du polyéthylène (8.8 eV -[50]). L'électrode d'Al (4.08 eV -[49]) a un travail de sortie électronique inférieure ce qui peut expliquer une injectant pour les porteurs négatifs par rapport à l'or. Cependant, l'Aluminium est également plus injectant pour les porteurs positifs que l'or [48] ce qui est en contradiction avec le fait précédent.

On note qu'un rapport direct entre le travail de sortie électronique d'un métal et la charge d'espace accumulée au contact de ce métal et d'un diélectrique n'a pas été démontrée jusqu'ici pour les matériaux organiques. On a démontré en particulier que la formation complexe à l'interface polymère/métal pouvait expliquer que la hauteur de barrière effective n'était pas déterminée par la fonction de travail des métaux utilisés comme électrodes. Dans les matériaux à forte bande interdite tous ces facteurs

peuvent expliquer que le travail de sortie ne détermine pas l'injection. Les états d'interface dus aux désordres physiques et chimiques au contact pourraient être les facteurs de contrôle, sans rapport franc avec la fonction de travail lui-même [39-41][42-44]. Une autre explication peut être que l'injection se fait par les états localisés dans l'espace de bande, par effet tunnel à travers la barrière au contact. En conclusion, les électrodes de SC injectent des électrons en comparaison avec les électrodes d'Or ce qui a été également rapporté [48]. Un rapport récent souligne la sensibilité extrême de l'accumulation de charge d'espace avec la nature de l'électrode semi-conductrice et de la formulation du polyéthylène [51].



Figure III. 5. L'évolution en fonction du temps de relaxation des charges négatives injectées par différents matériaux d'électrodes.

Nous avons étudié le comportement des interfaces d'électrode/XLPE en utilisant la technique électroacoustique pulsée. Les films de XLPE étaient exempts des sous-produits de réticulation. En conséquence, la distribution de charge d'espace a été dominée par l'injection des électrodes. La charge accumulée dans le diélectrique dépend de la nature de l'électrode or, aluminium et polyéthylène dopé au noir de carbone. Les électrodes d'aluminium et d'or peuvent injecter des électrons et des trous mais le taux d'injection est très inférieur pour l'or. Les électrodes semi-conductrices sont l'injecteur le plus efficace pour les porteurs électroniques. Bien qu'un certain rapport puisse exister entre le travail de sortie des électrons du métal et le taux d'injection pour des électrons, il ne fournit pas une explication pour l'injection de trou. Les états d'interface contrôlent sans doute l'injection de charge.

III.5 Mesure sur des structures sandwichs sans pré polarisation

Les mesures de charge d'espace que nous présentons ont été réalisées à température ambiante 25° C. La configuration de mesure a été choisie comme :

Interface physique

III.5.1 Influence des interfaces physiques sur l'accumulation des charges d'espace

Des profils de charges d'espace sous un champ de ± 33 kV/mm pendant la polarisation et en état de court-circuit sont montrés aux figures III.6 et III.7 pour les deux polarités de la tension appliquée.

a- Polarisation sous une tension positive

Ici la polarité des électrodes comme suit : Al comme cathode et SC comme anode, la dynamique de charge est représenté sur la figure III.6 :



Figure III. 6. Profil de la charge d'espace et du champ électrique : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation

Pour une tension positive appliquée (voir figure III.6. (a), (b)), le profil de polarisation, et plus clairement que le profil en dépolarisation, démontrent que les charges négatives ont dérivé dans les deux

couches diélectriques, étant efficacement injectées de l'interface d'Al/XLPE. Il n'y a aucune évidence d'injection positive au SC/XLPE, en accord avec l'effet de la nature de l'électrode sur l'injection de charge (SC anode n'injecte pas fortement). L'interface n'est pas vue comme emplacement préférentiel pour le piégeage de charge négative.

b- Polarisation sous une tension négative

Quand la polarité des électrodes est renversée c à d, SC comme cathode et Al comme anode, la dynamique de charge est différente comme représenté sur la figure III.7:



Figure III. 7. Profil de la charge d'espace et du champ électrique : (a)cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation

Pour une tension négative appliquée (voir figure 7(a), (b)), l'injection bipolaire est clairement indiquée dans la polarisation et dans la dépolarisation en accord avec le fait que l'anode d'Al et la cathode de SC injectent des trous et des électrons respectivement. L'interface physique n'est pas vue comme un emplacement préférentiel pour le piégeage de charge.

Ces résultats diffèrent de ceux dans [48] où on rapporte que des interfaces de PE/PE fournissent des centres de piégeage pour les porteurs de charge négatifs mais pas pour des porteurs de charge positifs.



III.5.2 Calcul de la profondeur du piège

Figure III. 8. la charge à proximité de la cathode et de l'anode. Des données sont prises des figures III.6, III.7.

La distribution de profondeur de piège peut être estimée à partir de la courbe d'affaiblissement de charge de la figure III.8 suivant l'approche par L.A. Dissado [61-62]. Dans les hypothèses du modèles, les pièges ont une densité constante dans la profondeur de piège, le dépiégeage de charge est thermiquement activé jusqu'à une profondeur maximum de piège, et le taux de déplacement des charges est commandé par le taux de dépiégeage des charges (les charges dépiégées ne sont pas repiégées). Il semble difficile de satisfaire toutes ces conditions dans un échantillon épais où l'extraction de la charge dépiégée comporte des processus multiples de piégeage et de dépiégeage. Cependant, on a montré [63] que l'approximation simple de dépiégeage donne des évaluations très bonnes de la distribution en énergie des états de piégeage.

Aux temps courts, aucun des niveaux de piège n'est dépeuplé :

$$\rho(t) = \rho(0) \qquad t < \left[\nu \exp\left(-\Delta_{\min} / KT\right) \right]^{-1} \tag{III.3}$$

où ρ (t) est la densité de charges d'espace dépendant du temps, ρ (0) la densité de charge initiale, $\nu = K.T/h$ est la fréquence de tentative de dépiégeage, K la constante de Boltzmann, h la constante de Planck et T la température en Kelvin.

Aux temps très longs, toutes les charges sont dépiégées

$$\rho(t)=0 \qquad [\nu \exp(-\Delta_{\max} / KT)]^{-1} < t \qquad (III.4)$$

Ceci peut être interprété pour signifier que jusqu'au temps t1, il n'y a pas de phénomènes de dépiégeage

$$t_1 = [\nu \exp(-\Delta_{\min} / KT)]^{-1} \implies \Delta_{\min} = KT \ln(t_1 \nu)$$
(III.5)

Jusqu'à ce que les pièges occupés plus profonds commencent à être vidés. Cette phase de l'affaiblissement finit quand les pièges les plus profonds sont vidés au temps t_2

$$t_2 = [\nu \exp(-\Delta_{\max} / KT)]^{-1} \Rightarrow \Delta_{\max} = KT \ln(t_2 \nu)$$
(III.6)

 Δ_{\min} et Δ_{\max} sont respectivement les profondeurs de pièges min et max.

De la figure III.8, nous prenons $[t_1=20 \text{ sec}; t_2=32 \text{ 880 sec}]$ et $[t_1=20 \text{ sec}; t_2=19 \text{ 200 sec}]$ pour les courbes d'affaiblissement de charges positive et négative donnant respectivement les valeurs présenté dans le tableau III.2. Ces profondeurs de piège sont des valeurs raisonnables pour les pièges chimiques dans le XLPE [64-65].

Tableau III. 2: Profondeurs de piéges déduites des courbes d'affaiblissement de charge de la figure III.8.

Polarisation de charge	Δ_{\min} (eV)	Δ_{\max} (eV)
Négative	0.8374	1.0146
Positive	0.8374	1.028

III.6 Effet d'une charge accumulée à l'interface polymère /polymère sur la dynamique de charge d'espace

Dans ce paragraphe, nous étudions le comportement du XLPE à deux couches polarisées au milieu et nous analysons la dynamique des charges d'espace en fonction du temps, du champ et de la température,

Des mesures ont été effectuées à différentes températures (de 0° C à 60 °C) dans une enceinte thermique à température contrôlée. La sensibilité et la résolution spatiale respectivement sont de l'ordre de 0.1 C/m⁻³ et 10 μ m. En exécutant l'expérience de la mesure sur la structure sandwich, une attention particulière a été portée à la transmission de l'onde acoustique à l'interface en assurant un contact intime entre les deux couches pour éviter la réflexion acoustique.

Nous utilisons un échantillon sous forme d'une structure sandwich constituée de l'assemblage de deux couches, chacune ayant une épaisseur d'environ 0.15mm.

La couche XLPE1 est tout d'abord polarisée sous une contrainte électrique continue 5kV pour tp=5mn, puis une seconde couche non polarisé, XLPE 2, est mise en contact avec elle, figure III.9.



Figure III. 9. Présentation de diélectrique en position de mesure.

III.6.1 Charge positive à l'interface

On a polarisé une couche de XLPE sous une contrainte électrique continue 5kV pour tp=5mn, puis on a posé une deuxième couche non polarisé sur la première couche polarisé, de telles sortes en a gardé l'interface chargé positivement au milieu de deux couches.

III.6.1.1 Mesure à température 25° C et charge positive de l'interface injectée à 25° C

Les mesures de charges d'espace ont été réalisées pendant 1 heure sous une tension 5kV puis en état de court - circuit pendent 30mn.

a. Profil initial de la charge après polarisation (25° C, 5kV, t =5mn)

La figure III.10, montre les conditions de polarisation imposées au film XLPE 1 (injection d'homocharge aux deux électrodes) conduisent à la génération d'une charge positive (qui apparaît au milieu de la structure sandwich) et d'une charge négative qui apparaît au voisinage de l'électrode à l'abscisse 0. Il n'apparaît pas de charge image positive sur l'électrode adjacente ; cela est dû à l'effet de la forte charge positive à l'interface qui crée à son tour une charge image négative qui compense la charge image positive de la charge à coté de l'électrode à l'abscisse 0. On note une diffusion de la charge positive dans le film XLPE 2 non polarisé, phénomène certainement dû à la pénétration des charges positives durant l'assemblage de la structure sandwich. Ce phénomène est aussi visible sur les expériences réalisées à des températures supérieures. On note enfin la charge image négative sur l'électrode à l'abscisse 0.28 mm.









b. Profils de polarisation et dépolarisation

La figure III.11.a, montre qu'à la température ambiante, la distribution de charge ne change pas de manière significative dans un délai d'une heure bien que de petites charges d'espaces négatives dues à l'injection se développent à proximité de la cathode. La quantité de charge positive piégée à l'interface n'est pas affectée par l'injection d'électron.

Sur la figure III.11.b on observe la charge négative de la couche à coté de l'électrode Ex cathode qui s'affaiblit rapidement tandis que la charge de l'interface diélectrique /diélectrique reste constante.



Figure III. 11. Profil de la charge d'espace et du champ électrique : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation

III.6.1.2 Mesure à température 40° C, et charge positive de l'interface injectée à 25° C

Les mesures des charges d'espace ont été réalisées pendant une heure sur une tension 5kV puis en état de court circuit pendent 30mn.

La configuration de mesure à été choisie comme suivante:

Cathode (Al) XLPE1 (pré polarisé) / XLPE2 (non pré polarisé)/Anode (SC)

a. Profil initial de la charge après polarisation (25° C, 5kV, t =5mn)

Les conditions de polarisation de la couche XLPE 1 génèrent une distribution bipolaire de charge. La charge injectée à l'anode conduit à la charge interfaciale dans la structure sandwich tandis que la charge négative est apparente au voisinage de l'électrode à l'abscisse 0. Il n'apparaît pas de charge image positive sur l'électrode adjacente ; cela est dû à l'effet de la forte charge positive à l'interface qui crée à son tour une charge image négative qui compense la charge image positive de la charge à coté de l'électrode à l'abscisse 0. On note une diffusion de la charge positive dans le film XLPE 2 non polarisé, phénomène certainement dû à la pénétration des charges positives durant l'assemblage de la structure sandwich. Ce phénomène est aussi visible sur les expériences réalisées à des températures supérieures. On note enfin la charge image négative sur l'électrode à l'abscisse 0.28 mm (voir figure III.12.a).







b. Profils de polarisation et dépolarisation

La figure III.13.a, montre qu'à la température 40° C on peut voir que la charge positive d'interface diminue puisque des électrons injectés de la cathode pénètrent dans le volume jusqu'à l'interface où ils compensent ou recombinent une partie de la charge positive initiale.

La figure III.13.b, montre que dans la couche à coté de l'électrode Ex cathode, la charge négative s'affaiblit assez rapidement. A l'interface diélectrique/ diélectrique, la charge positive augmente légèrement. Ceci est probablement lié au fait que les trous piégés à l'interface redeviennent détectables quand les électrons quittent l'interface diélectrique/diélectrique pour être rappelé par l'ex-cathode. Dans la couche à coté de l'électrode Ex anode on observe une charge positive due aux trous injectés de l'anode en polarisation.



Figure III.13. Profil de la charge d'espace et du champ électrique : (a)cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation

III.6.1.3 Mesure à température 60° C et charge positive de l'interface injectée à 25° C

Dans ce cas on a polarisé l'une des deux couches par une contrainte 5kV sous une température 25° C, puis les mesures de deux couches sont faites à T= 60° C.

a Profil initial de la charge après polarisation (25° C, 5kV, t =5mn)

La figure III.14.a, montre que les conditions de polarisation de la couche XLPE 1 génèrent une distribution bipolaire de charge. La charge injectée à l'anode conduit à la charge interfaciale positive dans la structure sandwich tandis que la charge négative est apparente au voisinage de l'électrode à l'abscisse 0. Il n'apparaît pas de charge image positive sur l'électrode adjacente ; cela est dû à l'effet de la forte charge positive à l'interface qui crée à son tour une charge image négative qui compense largement la charge image positive de la charge négative à coté de l'électrode à l'abscisse 0. On note une diffusion de la charge positive dans le film XLPE 2 non polarisé, phénomène certainement dû à la pénétration des charges positives durant l'assemblage de la structure sandwich. On note enfin la charge image négative sur l'électrode à l'abscisse 0.28 mm



Figure III. 14. a. Profil initial de la charge d'espace en cas de court circuit (25° C, 5kV, t =5mn)



b. Profils de polarisation et dépolarisation

À 60°C (voir la figure III.15.a), la charge négative pénètre plus profondément et la charge d'interface positive est fortement réduite. On note une modification de la position des pics de charges interne et capacitive due à la thermalisation de l'installation (le dispositif est tout d'abord inséré dans l'étuve, puis la température augmente et la consigne est affichée. l'expérience n'est donc pas isotherme), induisant un changement dimensionnel de l'épaisseur d'échantillon.

La relaxation de charge a été suivie quand l'échantillon est court-circuité après 60 minutes de polarisation. Ceci est montré en figure III.15.b. L'indication d'un peu de charge positive à proximité de l'anode, due à l'injection de charge, qui a été cachée sous la polarisation par la charge extérieure (nous notons que ceci est compatible avec une injection positive faible de l'électrode de (SC). Ceci montre encore l'existence d'une injection bipolaire. La charge est encore présente après 30 minutes de court-circuit. Il résulte que la distribution de champ ne change pas beaucoup au cours de la même période.



Figure III. 15. Profil de la charge d'espace et du champ électrique : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation

III.6.1.4 Mesure à température 60° C, et charge positive de l'interface injectée à 60° C

Dans ce cas on a polarisé l'une des deux couches par une contrainte 5kV sous une température 60° C, puis les mesures sur les deux couches sont faites à 60° C.

a. Profil initial de la charge après polarisation (60° C, 5kV, t =5mn)

Les conditions de polarisation de la couche XLPE 1 génèrent une distribution bipolaire de charge. La charge injectée à l'anode conduit à la charge interfaciale dans la structure sandwich tandis que la charge négative est apparente au voisinage de l'électrode à l'abscisse 0. Il apparaît de charge image positive sur l'électrode à l'abscisse 0; cela est dû à l'effet de la forte charge négative injectée à la cathode. On note une diffusion de la charge positive dans le film XLPE 2 non polarisé, phénomène certainement dû à la pénétration des charges positives durant l'assemblage de la structure sandwich. On note enfin une faible charge image négative sur l'électrode à l'abscisse 0.28mm cela est dû à l'effet de la forte charge négative injecté au voisinage de l'électrode à l'abscisse 0 qui crée à son tour une charge image positive qui compense la charge image négative de la charge interfaciale.



Figure III. 16. a. Profil initial de la charge d'espace en cas de court circuit (60° C, 5kV, t =5mn)





b. Profils de polarisation et dépolarisation

Dans le film polarisé à To=60°C avant la constitution de la structure sandwich (gardant autrement les mêmes conditions de polarisation : 36 kV/mm pour 5 minutes), l'évolution de la distribution de la charge est très importante (voir la figure III.17.a) avec un changement du signe de la charge interfaciale. Une interface physique peut donc agir en tant que zone de piégeage pour les deux types de porteurs.

Les profils de dépolarisation (voir la figure III.17. b) prouvent que les porteurs négatifs ont pénétré dans tout l'échantillon. La charge interfaciale se dissipe dans un délai d'une heure.

L'interface physique se comporte différemment et semble fournir un niveau plus profond de piégeage pour les porteurs de charges positifs. Il est clair que l'injection et le transport des électrons sont augmentés par l'augmentation de la température (voir les figures (de III.13 à III.17) pour des mesures aux températures à 40°C et à 60°C respectivement) [66].



Figure III. 17. Profil de la charge d'espace et du champ électrique : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation

Discussion

Afin dévaluer la dynamique des charges en fonction du temps pour le cas de polarisation et dépolarisation pour différentes valeurs de températures, nous avons calculé les valeurs moyennes de la charge d'espace de l'interface diélectrique/diélectrique. Les valeurs obtenues pour chaque courbe sont présentées sur les figures III.18, III.19.
A partir de la figure III.18 nous pouvons conclure que la décroissance de la charge positive de l'interface signifie que les températures élevées ont considérablement augmenté l'injection électronique à la cathode et son transport en volume. Ces charges négatives viennent donc compenser ou recombiner en partie la charge positive à l'interface (expériences à $T_0 = 25^{\circ}$ C et $T = 40^{\circ}$ C, $T_0 = 25^{\circ}$ C et $T = 60^{\circ}$ C) ou en totalité (avec inversion de polarité de la charge interfaciale ($T_0 = 60^{\circ}$ C et $T = 60^{\circ}$ C).



Figure III. 18. Evolution en fonction du temps des charges d'espace piégé dans les interfaces diélectrique/diélectrique pour différent valeurs de température : cas de polarisation, T₀: température de pré-polarisation de la couche chargée, T: température de mesure.

Pour les profils de dépolarisation figure III.19, on peut dire que l'augmentation de la charge positive de l'interface (expériences à $T_0 = 25^{\circ}$ C et $T = 40^{\circ}$ C, $T_0 = 25^{\circ}$ C et $T = 60^{\circ}$ C) signifie qu'une partie des électrons accumulés à l'interface (et non détectable puisque la charge nette à l'interface est positive) a été extraite du matériau sous l'action du champ de charge d'espace. Ceci conduit à une augmentation de la charge positive détectée. On voit d'autre part (expériences à $T_0 = 60^{\circ}$ C et $T = 60^{\circ}$ C) une décroissance rapide des charges négatives à l'interface (contrairement à ce qui est observé pour les charges positives à la même température) ce qui prouve que la relaxation des charges positives et négatives est très différentes, l'interface présentant des pièges plus profonds pour les charges positives que pour les électrons.



Figure III. 19. Evolution en fonction du temps des charges d'espace piégé dans les interfaces diélectrique/diélectrique pour différent valeurs de température : cas de dépolarisation. T₀: température de pré-polarisation de la couche chargée, T: température de mesure.

III.6.2 Charge négative à l'interface

On a polarisé une couche de XLPE sous une contrainte électrique continue 5kV pour tp=5mn, puis on a posé une deuxième couche non polarisé sur la première couche polarisé, de telles façons on a gardé l'interface chargé négativement au milieu de deux couches.

III.6.2.1 Mesure à température 25° C et charge négative de l'interface injecté à 25° C

Les mesures des charges d'espace ont prise pendent une heure sur une tension 5kV puis en état court circuit pendent 30mn.

a. Profil initial de la charge après polarisation (25° C, 5kV, t =5mn)

La figure III.20, montre les conditions de polarisation imposées au film XLPE 1 (injection d'homocharge aux deux électrodes) conduisent à la génération d'une charge négative (qui apparaît au milieu de la structure sandwich) et d'une charge positive qui apparaît au voisinage de l'électrode à l'abscisse 0. Il n'apparaît pas de charge image négative sur l'électrode adjacente ; cela est dû à l'effet de la forte charge négative à l'interface qui crée à son tour une charge image positive qui compense la charge image négative de la charge à coté de l'électrode à l'abscisse 0. On note une diffusion de la charge négative dans le film XLPE 2 non polarisé, phénomène certainement dû à la pénétration des charges négatives durant l'assemblage de la structure sandwich. Ce phénomène est aussi visible sur les expériences réalisées à des températures supérieures. On note enfin la charge image positive sur l'électrode à l'abscisse 0.28 mm.



Figure III. 20. a. Profil initial de la charge d'espace en cas de court circuit (25° C, 5kV, t =5mn)



b. Profils de polarisation et dépolarisation

La figure III.21.a, montre la distribution de charge d'espace dans deux couches de XLPE pour un temps de polarisation une heure.

Prés de la cathode: aux temps courts (0 à 5 min), nous observons une charge positive due à la polarisation initiale de la première couche (XLPE1). Cette charge est détectable sous tension, en dépit de l'existence de la charge négative portée par la cathode. Ceci montre l'importance des phénomènes d'injection positive au cours de la phase de polarisation de la couche XLPE 1. Au cours de la polarisation (temps > 5 min), cette charge se recombine avec les charges négatives injectées, puis elles sont neutralisées complètement jusqu'à ce que la charge négative domine prés de la cathode. A l'interface diélectrique/diélectrique, la charge négative reste constante.

Après une heure de polarisation, la distribution de charge d'espace en court circuit, a été mesurée et suivie pour 30mn, figure III.21.b. On observe que des charges négatives se sont distribuées à travers le volume de l'échantillon. L'interface physique ne semble pas constituer une barrière pour le transport des charges négatives.



Figure III. 21. Profil de la charge d'espace et du champ électrique : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation

III.6.2.2 Mesure à température 40° C et charge négative de l'interface injecté à 25° C

Les mesures des charges d'espace ont prise pendent une heure sur une tension 5kV puis en état court circuit pendent 30mn.

a. Profil initial de la charge après polarisation (25° C, 5kV, t =5mn)

La figure III.22.a, montre que les conditions de polarisation de la couche XLPE1 génèrent une distribution bipolaire de charge. La charge injectée à la cathode conduit à la charge interfaciale dans la structure sandwich tandis que la charge positive est apparente au voisinage de l'électrode à l'abscisse 0. Il n'apparaît pas de charge image négative sur l'électrode adjacente ; cela est dû à l'effet de la forte charge positive à coté de l'électrode à l'abscisse 0 qui crée à son tour une charge image négative qui compense la charge image positive de la charge à l'interface. On note une diffusion de la charge négative dans le film XLPE 2 non polarisé, phénomène certainement dû à la pénétration des charges négatives durant l'assemblage de la structure sandwich. Ce phénomène est aussi visible sur les expériences réalisées à des températures supérieures. On note enfin la charge image positive sur l'électrode à l'abscisse 0.28mm.



b. Profils de polarisation et dépolarisation

A la figure III.23.a: au voisinage de la cathode, on observe la neutralisation des charges positives accumulées durant la polarisation du film XLPE1 par les électrons injectés. A l'interface diélectrique/diélectrique la charge négative diminue très légèrement. Ceci peut avoir deux origines: soit des électrons piégés à l'interface diélectrique/diélectrique sont dépiégés et migrent vers l'anode, soit des charges positives, injectées de l'anode viennent s'accumuler à l'interface. En l'absence d'évidence d'injection de charges positives à l'anode, nous privilégions la première hypothèse.

A la figure III.23.b, on observe que les charges négatives ont migré dans la couche XLPE 2. Là encore, on constate que l'interface diélectrique/diélectrique ne constitue pas une barrière pour le transport des électrons. Dans la couche à coté de l'électrode Ex cathode un affaiblissement rapide de la charge négative est observé, ce qui signifie un piégeage peu profond de ces charges. A l'interface diélectrique/ diélectrique la charge négative reste constante.



Figure III. 23. Profil de la charge d'espace et du champ électrique : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation

III.6.2.3 Mesure à température 60° C et charge négative de l'interface injecté à 25° C

Les mesures des charges d'espace ont prise pendent une heure sur une tension 5kV puis en état court circuit pendent 30mn.

a. Profil initial de la charge après polarisation (25° C, 5kV, t =5mn)

La figure III.24.a, montre les conditions de polarisation de la couche XLPE 1 génèrent une distribution bipolaire de charge. La charge injectée à la cathode conduit à la charge interfaciale négative dans la structure sandwich tandis que la charge positive est apparente au voisinage de l'électrode à l'abscisse 0. Il n'apparaît pas de charge image négative sur l'électrode adjacente ; cela est dû à l'effet de la forte charge négative à l'interface qui crée à son tour une charge image positive qui compense largement la charge négative de la charge positive à coté de l'électrode à l'abscisse 0. On note une diffusion de la charge négative dans le film XLPE 2 non polarisé, phénomène certainement dû à la pénétration des charges négative durant l'assemblage de la structure sandwich.. On note enfin la charge image positive sur l'électrode à l'abscisse 0.28 mm





Figure III. 24. b Profil initial du champ résiduel en cas de court -circuit (25° C, 5kV, t =5mn)

b. Profils de polarisation et dépolarisation

La figure III.25.a, montre les mêmes phénomènes que ceux mis en évidence à 40°C. A la fin de l'application du tension, on observe la charge positive prés de l'électrode cathode diminue à cause des phénomènes de recombinaison avec les électrons extrais de la cathode. A l'interface diélectrique/diélectrique la charge négative augmente légèrement. La température stimule l'injection et le transport des charges négatives.

Sur la figure III.25.b on observe dans la couche à coté de l'électrode Ex cathode une charge positive qui augmente avec le temps de dépolarisation. Ceci est dû à la polarisation initiale de la première couche: les charges positives accumulées n'ont donc pas été recombinées mais seulement compensées puisqu'elles réapparaissent lorsque la quantité de charges négatives diminue.

A l'interface diélectrique/ diélectrique, on observe une faible diminution de charges négatives.



Figure III. 25. Profil de la charge d'espace et du champ électrique : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation

III.6.2.4 Mesure à température 60° C et charge négative de l'interface injectée à 60° CLes mesures des charges d'espace ont prise pendent 1 heure sur une tension 5kV puis en état

court circuit pendent 30mn.

a. Profil initial de la charge après polarisation (60°C, 5kV, t =5mn)

Les conditions de polarisation de la couche XLPE 1 génèrent une distribution bipolaire de charge. La charge injectée à la cathode conduit à la charge interfaciale dans la structure sandwich tandis que la charge positive est apparente au voisinage de l'électrode à l'abscisse 0. Il apparaît de charge image négative sur l'électrode à l'abscisse 0; cela est dû à l'effet de la forte charge positive à coté de l'électrode à l'abscisse 0. On note une diffusion de la charge négative dans le film XLPE 2 non polarisé, phénomène certainement dû à la pénétration des charges négatives durant l'assemblage de la structure sandwich. On note enfin une charge image positive sur l'électrode à l'abscisse 0.28mm cela est dû à l'effet de la charge interfaciale négative (voir figure III.26.a).



La température conduit à une distribution bipolaire de charge avec la même amplitude pour les charges positives et négatives.

b. Profils de polarisation et dépolarisation

La distribution de la charge initiale (à t = 1 min, figure III.27.a) montre une quantité considérable de charge positive à proximité de la cathode. La charge positive due à l'étape de remplissage est progressivement compensée à proximité de la cathode par l'injection négative. Le profil de dépolarisation montré dans la figure III.27.b confirme l'affaiblissement rapide de la charge négative et du champ électrique dans l'échantillon [67].



Figure III. 27. Profil de la charge d'espace et du champ électrique : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation

Discussion

Afin dévaluer la dynamique des charges en fonction du temps pour le cas de polarisation et dépolarisation pour différente valeurs des températures, nous avons calculé les valeurs absolue de la charge négative de l'interface diélectrique/diélectrique. Les valeurs obtenues pour chaque courbe sont présentées dans la figure III.28.

A partir de la figure III.28, on peut conclure que la croissance de la charge négative de l'interface signifie que les températures élevées augmentent l'injection à la cathode et le transport en volume. Il résulte que le transport d'électrons domine plus que dans le cas précédent (charge interfaciale positive): en particulier, injection électronique beaucoup plus nette à $T = 60^{\circ}$ C cela pourrait être lié à la charge

positive piégée au voisinage de la cathode qui devrait augmenter le champ d'interface et donc faciliter l'injection d'électrons.



Figure III. 28. Evolution en fonction du temps des charges d'espace piégé dans l'interface diélectrique /diélectrique pour différentes valeurs de température : cas de polarisation.

Pour le profil de dépolarisation figure III.29, les résultats ont indique que la charge négative à l'interface décroît très rapidement lorsque la température augment (a $T=60^{\circ}$ C) se qui signifie que a des températures élevé ($T=60^{\circ}$ C) le transport des porteur de charges est régie par le mouvement des chaînes des polymères, il résulte que les pièges à l'interface diélectrique/diélectrique semblent peut profonds pour les électrons.



Figure III. 29. Evolution en fonction du temps des charges d'espace piégé dans l'interface diélectrique /diélectrique pour différent valeurs de température : cas de dépolarisation.

III.7 Conclusion

Nous avons étudié le comportement de remplissage d'électrode/XLPE et d'interfaces physiques de XLPE/XLPE utilisant la technique électroacoustique pulsée. Les échantillons de XLPE étaient exempts des sous-produits de réticulation. En conséquence, la distribution des charges d'espace est dominée par l'injection des électrodes. La charge accumulée dans le diélectrique dépend de la nature d'électrode, telle que le polyéthylène chargé par le noir de carbone, l'or, ou l'aluminium. Les électrodes d'aluminium et d'or peuvent injecter des électrons et des trous mais le taux d'injection est très inférieur pour l'or. Les électrodes Semi-conductrice constituent l'injecteur le plus efficace pour les porteurs électroniques. Bien qu'un certain rapport puisse exister entre le travail de sortie des électrons du métal et le taux d'injection pour des électrons, il ne fournit pas une explication pour l'injection de trou. Les états d'interface contrôlent probablement les phénomènes l'injection de charge [68].

L'interface diélectrique/diélectrique n'est pas vue comme emplacement préférentiel de piégeage pour des porteurs. Le transport de charge semble se produire facilement d'une couche à l'autre. Une interface chargée avec les porteurs positifs ou négatifs est affectée par transport de charge d'autant plus que la température est augmentée. La charge interfaciale peut être compensée et/ou recombinée par des charges de polarité opposée. La dissipation de la charge pendant la dépolarisation à l'interface diélectrique/diélectrique fournit des pièges plus profonds pour les charges positives que pour des charges négatives. Des charges positives sont encore piégées à 60°C après 30 minutes de dépolarisation.

Les interfaces physiques constituées par l'association de deux diélectriques identiques ne se conforment pas au comportement habituel de Maxwell-Wagner-Sillars et les charges d'espace doivent être prises en considération.

On peut également conclure que la température a de nombreux effets sur la dynamique de charge d'espaces telles que l'injection de charges et leurs mobilités.

IV.1 Introduction

Dans le chapitre III, nous nous sommes intéressés au comportement des interfaces physiques constituées par le contact d'une électrode et d'un diélectrique (métal/XLPE), ou par la mise en contact de deux diélectriques identiques (diélectrique/diélectrique). Dans ce chapitre, nous traitons du comportement des interfaces constituées par l'association de deux diélectriques de différente nature. Notre choix s'est arrêté sur le polyéthylène basse densité (LDPE) et le Copolymère d'éthylène propylène Fluoré (FEP).

Nous nous sommes concentrés sur l'influence sur la formation de la charge d'espace, de la polarité de la tension, de la nature des électrodes, de l'épaisseur des films constituants la structure sandwich, du champ électrique, de la température et du temps.

IV.2 Courant de conduction dans un isolant

IV.2.1 Conduction sous champ faible (14 kV/mm)

Des courants électriques, d'origine différente, peuvent coexister dans un diélectrique et sont classés selon leur déphasage par rapport au champ appliqué.

Le courant de conduction ou ohmique, résulte d'un mouvement de charges (électronique, ioniques,) qui se déplacent sur de grandes distances en phase avec le champ. Si l'on admet la loi d'Ohm, la densité de courant de conduction, J, pouvant traverser de part en part un élément de matière, s'écrit sous sa forme locale pour un matériau isotrope :

$$\vec{J} = \sigma_c \cdot \vec{E} = (\sigma_e + \sigma_i)\vec{E}$$
(IV.1)

Avec σ_c la conductivité directe comprenant une contribution électronique σ_e et ionique σ_i et \overline{E} le champ électrique appliqué.

Des mesures de courant de conduction ont été faites dans le volume et en surface (par utilisation d'un anneau de garde) de deux diélectriques LDPE et FEP.



Figure IV.1. Courants de conduction du LDPE et FEP (a) dans le volume, (b) sur la surface.

La figure IV.1.a, montre clairement que le courant de conduction dans le volume du diélectrique LDPE est plus grand que le courant dans le volume du diélectrique FEP pour la même valeur du champ appliquée E = 14.3 kV/mm. On peut déduire de la courbe (a) la conductivité de LDPE : $\sigma_{LDPE} \approx 3008.18 \times 10^{-18} [\Omega^{-1} \text{ m}^{-1}]$ et la conductivité FEP : $\sigma_{FEP} \approx 47.8 \times 10^{-18} [\Omega^{-1} \text{ m}^{-1}]$ à température 21°C. Alors $\sigma_{LDPE} \approx 62.93.\sigma_{FEP}$ à un temps de polarisation de deux heures.

La figure .IV.1.b, montre que le courant de surface du diélectrique LDPE est plus important que le courant de surface du diélectrique FEP. Il est clair que le courant surfacique est toujours plus grand que le courant de volume pour les deux cas soit le LDPE ou le FEP figure IV.2, ce qui résulte que la conductivité de surface est plus grande que la conductivité de volume cela est traduit par la nature de la surface qui présente des propriétés diélectriques faibles à cause de leur structure physique : des liaisons cassées, des chaines pliées des bulles d'air ... à cause de tous ces défauts physiques la surface devient un centre de pièges peu profond qui augmente la conductivité



Figure IV.2. Courants de conduction dans le volume et la surface : (a) dans le diélectrique LDPE, (b) dans le diélectrique FEP.

IV.2.2 Effet du champ électrique

Les mesures ont été prises à des intervalles du temps 15 minutes pendant des périodes sous tension, puis en état court-circuit figure IV.3.



Figure IV. 3. Cycle du champ électrique appliqué pour les mesures de courant de conduction.



Figure IV.4. Courant de conduction (a) et la conductivité (b) dans le volume du diélectrique LDPE et FEP en fonction du champ appliqué.

D'après la figure IV.4, il est clair que la conductivité du diélectrique LDPE augmente avec l'augmentation du champ appliqué. Par contre, la conductivité du FEP ne varie pas trop avec la valeur du champ appliqué, Nous remarquons que pour les gammes du champ électrique entre [0, 8] kV/mm, la conductivité des deux diélectriques est presque la même, puis à partir de 8 kV/mm la conductivité du LDPE augmente considérablement avec l'augmentation du champ appliquée, alors que la conductivité du FEP ne change pas en fonction du champ jusqu'à la valeur de 24 kV/mm.

IV.3 Effet de la nature des électrodes sur les charges d'espace et la charge interfaciale

Les mesures de charges d'espace ont été réalisées pendant une heure de polarisation sous une tension de -5 kV, puis en état de court circuit pendant 30mn.

La configuration de mesure choisie est : Anode / LDPE / FEP / Cathode, les épaisseurs des films de LDPE et FEP sont respectivement d_1 =0.25 mm, et d_2 =0.1 mm, la température est la température ambiante (25°C). Le champ appliqué est de 14.3 kV/mm. Pour des champs de cette intensité, on ne s'attend pas à ce que les phénomènes d'injection soient prépondérants (comme le montrent les mesures de courant: régime quasi-ohmique).

IV.3.1 Polarisation sous tension négative

Les mesures des charges d'espace ont été réalisées pendant une heure sur une tension -5kV puis en état de court circuit pendent 30mn.

IV.3.1.1 Electrodes Al(+) / SC(-)

Le profil de polarisation (figure IV.5.a) montre une charge positive accumulée à l'interface diélectrique LDPE/FEP; cette charge augment avec la durée de polarisation.

Le profil de dépolarisation (figure IV.5.b) montre une charge positive distribuée dans le volume du diélectrique côté LDPE, et aucune charge négative près de l'électrode Ex cathode (SC).



Figure IV. 5. Profil de la charge d'espace et du champ électrique pour des échantillons Al (+)/LDPE/FEP/SC (-) : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

IV.3.1.2 Electrodes SC (+) / SC (-)

Le profil de polarisation (figure IV.6.a) montre qu'au premier instant de polarisation aucune charge n'est mesurée, puis après quelques instants on observe une accumulation d'une charge positive distribuée près de l'interface diélectrique LDPE / FEP ; cette charge augmente légèrement avec la durée de polarisation.

Le profil de dépolarisation (figure IV.6.b) montre une quantité de charge positive distribuée dans le volume du diélectrique LDPE avec un maximum coté interface diélectrique LDPE / FEP. Nous ne notons aucune charge négative détectée prés de l'électrode Ex cathode (SC). En plus, la quantité de la charge interfaciale dans le cas des électrodes SC (+) SC (-) est plus faible par rapport à la quantité de la charge interfaciale dans le cas des électrodes Al (+), SC (-).



Figure IV.6. Profil de charge d'espace et du champ électrique : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

IV.3.1.3 Electrodes Or (+) / Or (-)

Comme dans le cas précédent, le profil de polarisation (figure IV.7.a) montre une quantité de charge positive distribuée près de l'interface diélectrique LDPE / FEP ; cette charge augmente légèrement avec la durée de polarisation.

En dépolarisation, la figure IV.7.b montre une quantité de charge positive distribuée dans le volume du diélectrique avec un maximum coté interface diélectrique LDPE / FEP. Notons que la densité de charge est extrêmement faible. Nous ne remarquons aucune charge négative mesurée prés de l'électrode Ex cathode (SC).



Figure IV.7. Profil de charge d'espace et du champ électrique : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

IV.3.1.4 Discussion

Les résultats expérimentaux de la section précédente prouvent que la charge interfaciale est toujours positive. Nous notons que les distributions obtenues dans le cas IV.3.1.2 et IV.3.1.2, qui sont des configurations faiblement injectantes, sont très comparables et qu'elles ne traduisent pas l'existence d'une charge d'espace importante. On peut donc faire l'hypothèse que dans de tels cas, champ faible et peu d'injection, c'est l'effet de Maxwell-Wagner qui est mis en évidence, avec une indépendance de la

charge interfaciale en fonction de la nature des électrodes. Il reste à comparer les prévisions de charge interfaciale dérivées de la formulation de Maxwell - Wagner avec les résultats expérimentaux.

Par contre, dans le cas IV.3.1.1, il apparaît que la charge positive accumulée à l'interface des deux diélectriques provient aussi de l'injection de charges positives à l'anode Aluminium, conformément au caractère injectant de cette électrode en polarité positive. On observerait donc un comportement lié en partie à la polarisation de Maxwell - Wagner, et à l'injection de charge. La dépendance en fonction de la nature des électrodes est cohérente avec une telle interprétation.

Afin d'évaluer les quantités des charges positives injectées à l'interface diélectrique LDPE / FEP pour différents matériaux d'électrodes pour une polarisation sous tension négative, nous calculons les valeurs absolues des charges positives distribuées aux interfaces diélectriques LDPE / FEP dans les cas de polarisation et dépolarisation. Les valeurs obtenues pour chaque courbe sont présentées dans les figures IV.8 et IV.9 respectivement.



Figure IV.8. Evolution en fonction du temps de polarisation de la charge interfaciale pour différents matériaux d'électrodes (la charge interfaciale positive est obtenue par l'intégrale du pic de charge à l'interface).

La figure IV.8, montre une comparaison entre les quantités des charges positives accumulées aux interfaces diélectrique LDPE / FEP. On voit bien que les quantités de charge accumulées à l'interface dans les cas Or/Or et SC/SC sont comparables quantitativement et dynamiquement. Par contre la charge injectée par l'électrode Al/SC est très importante ce qui vient à dire que l'électrode Al injecte plus de charge positive que l'électrode Or et l'électrode SC.





(La charge interfaciale positive est obtenue par l'intégrale du profil de dépolarisation). Les résultats en dépolarisation confirment bien sûr ceux de la figure IV.8. La dynamique de dépolarisation est la même quelles que soient les situations expérimentales ce qui montre que la décharge est contrôlée par les mêmes distributions de pièges à l'interface des deux matériaux.

IV.3.1.5 Comparaison entre la charge d'espace mesurée et la charge due à la polarisation de Maxwell -Wagner



Figure IV.10. Comparaison entre la charge interfaciale injectée par différents matériaux d'électrodes et la charge due à la polarisation de Maxwell - Wagner.

La figure IV.10, montre une comparaison entre les quantités des charges positives accumulées aux interfaces diélectrique LDPE / FEP et la charge due à la polarisation de Maxwell-Wagner. On voit bien que les quantités de charge accumulées à l'interface dans les cas Or/Or et SC/SC et Al/SC sont plus importantes que la charge due à la polarisation de Maxwell-Wagner. Ceci vient en support à la possibilité que la charge observée soit due à un effet de la charge d'espace dû à l'injection des électrodes, sans effet Maxwell-Wagner, car la courbe de Maxwell-Wagner indique une charge très faible par rapport à ce qui est mesuré.

Nous constatons que les quantités de charges d'espaces accumulées aux interfaces diélectriques LDPE/FEP sont dues à l'injection des électrodes. L'effet de Maxwell-Wagner ne conduit qu'à une accumulation négligeable de charges aux interfaces.

IV.3.2 Polarisation sous tension positive

Les mesures des charges d'espace ont été réalisées pendant une heure sur une tension 5kV puis en état de court circuit pendent 30mn.

IV.3.2.1 Electrodes Al(-) / SC(+)

La figure IV.11.a, montre une charge négative accumulée à l'interface diélectrique LDPE / FEP. Cette charge augmente avec la durée de polarisation.

Le profil de dépolarisation (figure IV.11.b) montre une charge négative accumulée à coté de l'interface diélectrique LDPE / FEP, côté FEP, et une faible charge positive détectée près de l'électrode Ex cathode ; cette charge augmente avec la durée de dépolarisation. On est donc amené à supposer que des électrons quittent le diélectrique LDPE vers l'électrode Ex cathode, ce qui rend la charge positive détectable. L'origine de la charge positive serait due à l'injection de l'électrode anode dans le cas de la polarisation, et sous l'effet du champ extérieur cette charge se déplace de l'anode vers la cathode. Notant que la décharge de la charge positive et négative est un peut rapide.



Figure IV.11. Profil de la charge d'espace et du champ électrique : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

IV.3.2.2 Electrodes SC(-) / SC(+)

Le profil de polarisation (figure IV.12.a), montre une accumulation de la charge négative à l'interface, cette charge augmente assez fortement avec la durée de polarisation.

Le profil de dépolarisation (figure IV.12.b) montre une grande quantité de charge négative distribuée sur l'interface diélectrique LDPE/FEP et une faible densité de charge positive accumulée coté LDPE. Il est clair que la charge négative de l'interface LDPE / FEP se décharge assez rapidement, par contre la charge positive côté LDPE reste constante.



Figure IV.12. Profil de la charge d'espace et du champ électrique : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

IV.3.2.3 Electrodes Or (-) / Or(+)

Le profil de polarisation (figure IV.13.a) montre une faible charge négative accumulée à l'interface diélectrique LDPE / FEP qui augmente avec le temps de polarisation. On note aussi une faible densité de charge d'espace positive au voisinage de l'électrode anode (Or), ce qui est confirmé par les profils en dépolarisation (figure IV.13.b). Sous l'effet du champ électrique extérieur, les trous se déplacent à travers le diélectrique vers la cathode, une partie de ces trous sont extraits à l'électrode Ex cathode, et l'autre partie reste piégée dans la couche LDPE. Nous remarquons en plus une stabilité de la distribution de charge en dépolarisation.



Figure IV.13. Profil de la charge d'espace et du champ électrique : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

IV.3.2.4 Discussion

Afin d'évaluer les quantités de charges négatives accumulées à l'interface LDPE / FEP pour différents types d'électrodes pour une polarisation sous tension positive, nous calculons les valeurs absolues des charges négatives distribuées aux interfaces diélectriques LDPE / FEP dans les cas de polarisation et dépolarisation. Les valeurs obtenues pour chaque courbe sont présentées aux figures IV.14 et IV.15 respectivement.



Figure IV.14. L'évolution en fonction du temps de la polarisation de la charge interfaciale injecté par différents matériaux d'électrodes

(La charge interfaciale négative est obtenue par l'intégrale du profil de polarisation).

La figure IV.14, montre une comparaison entre les quantités de charges négatives accumulées à l'interface LDPE/FEP en fonction de différents matériaux d'électrode.

D'après ces courbes, nous pouvons constater que les configurations Or/Or et Al/SC conduisent qualitativement et dynamiquement aux mêmes évolutions, avec une charge d'espace volumique très faible mise en évidence en dépolarisation. On peut donc émettre l'hypothèse que dans tel cas, la charge d'interface est dominée par le mécanisme de Maxwell-Wagner, et que les phénomènes d'injection ne sont pas très influents. La situation est différente pour la configuration SC/SC dans laquelle la quantité de charge interfaciale est beaucoup plus importante et a une dynamique différente. On note aussi que dans ce cas, le niveau de charge d'espace détecté en volume est sensiblement plus important. Il s'en suit que la charge interfaciale pourrait résulter de deux contributions: polarisation interfaciale de Maxwell-Wagner, et injection de charge aux électrodes.

On note d'ailleurs que les configurations Or/Or sont moins injectantes que les configurations SC/SC. De plus, nous avons montré que la cathode (Al) est moins injectante que la cathode (SC). Les résultats sont donc cohérents.

En comparant les résultats obtenus sous tension positive et négative, on note que les configurations qui se différencient par rapport à l'accumulation de charge à l'interface LDPE/FEP sont les suivantes:

Cathode (SC)/anode (SC) sous tension positive et anode (Al)/ cathode (SC) sous tension négative. Ceci est cohérent avec les effets d'électrode sur l'injection puisque des électrodes SC sont réputées injectantes sous les deux polarités mais la cathode (SC) est plus injectante des électrons, et l'anode (Al) est très efficace pour l'injection de trou.



Figure IV.15. L'évolution en fonction du temps de relaxation de la charge interfaciale injecté par différent matériaux d'électrodes

(La charge interfaciale négative est obtenue par l'intégrale de profil de dépolarisation).

La figure IV.15, montre l'évolution de la charge interfaciale en dépolarisation. Elle confirme bien sûr ce qui a été dit pour les évolutions montrées en Figure IV.14. La dynamique de dépolarisation est assez semblable quelles que soient les situations expérimentales; ce qui montre que la décharge est contrôlé par les mêmes distributions de pièges à l'interface des deux matériaux.

IV.3.2.5 Comparaison entre ce que prévoit Maxwell Wagner par rapport à ce qui est mesuré

La figure IV.16, montre que la charge due à la polarisation de Maxwell - Wagner est très faible en comparaison par rapport à la charge mesurée pour différents types d'électrodes; ce qui nous permet à conclure que la charge mesurée est une charge d'espace due à l'effet de l'injection des électrodes sans l'effet de Maxwell - Wagner.



Figure IV.16. Comparaison entre la charge interfaciale injectée par différents matériaux d'électrodes et la charge due à la polarisation de Maxwell - Wagner

Nous pouvons donc conclure que pour des expériences sous champ faible (14 kV/mm), pour lesquelles nous avons montré que les courants étaient quasi-ohmiques (ce qui montre la faible importance des phénomènes d'injection), la charge à l'interface des LDPE/FEP reste pourtant dominée par les phénomènes d'injection aux électrodes, avec des densités de charge d'espace en volume (hors interface) détectée très faible, à la limite du seuil de détection des appareillages. Ces distributions restent indépendantes de la polarisation de Maxwell - Wagner. Dans un tel cas, les phénomènes d'accumulation à l'interface sont contrôlés par l'injection des électrodes.

IV.4 Effet de l'épaisseur des diélectriques sur les charges d'espace et la charge interfaciale pour une polarisation sous tension négative

Les échantillons ont la même épaisseur $d_1=0.1$ mm et $d_2=0.1$ mm. La configuration de mesure à été choisie comme suit: Anode (Al) / LDPE / FEP / Cathode (SC).

Les mesures de charges d'espace ont été réalisées pendant une durée de polarisation d'une heure sous une tension de -5 kV, puis en état de court circuit pendant 30mn. Ces mesures ont été réalisées à 25°C.

IV.4.1.1 Configuration LDPE / FEP

Le profil de polarisation (figure IV.17.a) montre qu'aux premiers instants de la polarisation, aucune charge n'est mesurée dans les deux couches diélectriques et même à l'interface diélectrique LDPE/FEP. Après 5 mn de polarisation, nous observons une accumulation d'une charge positive distribuée à l'interface diélectrique LDPE / FEP. Cette charge augmente avec la durée de la polarisation. Dans la couche FEP, aucune charge n'est mesurée.

Pour voir la distribution de la charge dans le volume, nous enregistrons le profil de la charge en dépolarisation (figure IV.17.b).

La figure IV.17.b, montre une quantité de charge positive distribuée dans le volume du diélectrique LDPE.



Figure IV.17. Profil de la charge d'espace et du champ électrique : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation

IV.4.1.2 Configuration FEP / LDPE

Le profil de polarisation (figure IV.18.a) montre que pendant les premiers instants de polarisation, aucune charge n'est détectée par la PEA dans le volume du diélectrique et même à l'interface diélectrique. Après 5mn, nous observons une faible accumulation d'une charge négative dans la couche LDPE. Cette charge augmente avec la durée de polarisation. L'origine de cette charge semble donc être l'injection d'électrons à partir de d'électrode (SC) cathode. Pour voir la distribution de la charge dans le volume, nous enregistrons le profil de la charge en dépolarisation (figure IV.18.b).

La figure IV.18.b, montre une grande quantité de charge négative distribuée largement dans le volume du diélectrique LDPE avec un maximum à coté de l'interface diélectrique LDPE / FEP. Notons qu'aucune charge positive n'est détectée prés de l'électrode Ex anode (Al).



Figure IV.18. Profil de charge d'espace et du champ électrique : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

IV.4.1.3 Discussion

Afin de préciser clairement la position exacte de l'interface diélectrique LDPE/ FEP et FEP / LDPE nous avons choisi deux diélectriques de même épaisseur d_{LDPE}= 0.1 mm, d_{FEP}=0.1 mm.

Les résultats montrent que seule la couche de polyéthylène se charge, avec la polarité de l'électrode avec laquelle elle est en contact. De plus, on détecte des charges en volume du polyéthylène. Tout se passe donc comme si les phénomènes d'injection dominaient la formation de la charge d'espace observée. Celle-ci resterait bloquée à l'interface des deux diélectriques.

Lorsque le LDPE jouxte l'anode, les trous injectés de l'anode (Al) vers le diélectrique se déplacent sous l'effet du champ électrique à travers le volume et se trouvent bloqués à l'interface des deux diélectriques ; ce blocage va créer une accumulation d'une charge positive. Ces trous ne peuvent pas traverser l'interface du diélectrique LDPE/ FEP à cause de la discontinuité de la conductivité à l'interface.

Lorsque le LDPE jouxte la cathode, les électrons entrés de la cathode (SC) se distribuent largement dans le volume du diélectrique LDPE avec un maximum à coté de l'interface, diélectrique LDPE/FEP. La charge négative se trouve bloquée en bordure du diélectrique LDPE et ne peut pas traverser l'interface du diélectrique LDPE/FEP à cause du changement de la conductivité.

IV.4.2 Effet du champ appliqué

Afin d'éliminer l'effet de la température sur l'injection, toutes nos mesures ont été effectuées à une température basse de 20°C. Trois niveaux de tension ont été utilisés / 3kV, 5kV et 10kV.

La configuration de mesure choisie est comme suit : Anode (Al) / LDPE / FEP / cathode (SC), et les deux diélectriques sont soumis à une polarisation sous une tension négative.

Les épaisseurs considérées ici sont : d_{LDPE}=0.25mm, d_{FEP}=0.1mm

a- Champ électrique appliqué E=8.6 kV/mm

Le profil de polarisation (figure IV.19.a) montre que sous l'effet d'un faible champ électrique de 8.6 kV/mm, aucune charge significative n'est mesurée à l'interface diélectrique LDPE/ FEP. Le profil de dépolarisation (figure IV.19.b) montre clairement ce résultat. Nous observons une faible charge positive distribuée à travers le volume de diélectrique avec un maximum à coté de l'anode. L'absence de la charge interfaciale signifie que les matériaux à différente conductivité se comportent identiquement sous l'effet d'un champ électrique faible. De plus, La faible quantité de charge injectée dans le volume du diélectrique signifiée clairement que si le champ électrique ne dépasse pas une certaine valeur seuil, l'injection est extrêmement difficile. Ce résultat est confirmé par la figure IV.4.b, qui montre qu'à un faible champ de 8.6 kV/mm, les conductivités des deux matériaux LDPE et FEP sont presque les mêmes, le courant de conduction définie par le déplacement des charges d'espace est très faible sous un champ égal à 8.6 kV/mm.



Figure IV.19. Profil de charge d'espace et du champ électrique : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

b. Champ électrique appliqué E=14.3 kV/mm

La figure IV.20.a, montre que pendant les premiers instants de la polarisation, aucune charge n'est détectée dans les deux diélectriques et même à l'interface. Après 5 mn de polarisation, nous avons observé une charge positive accumulée à l'interface diélectrique LDPE/ FEP. Cette charge augmente avec la durée de polarisation. Pour le profil de dépolarisation (figure IV.20.b), on voit clairement une charge positive distribuée à travers le volume du diélectrique LDPE avec un maximum à coté de l'interface diélectrique LDPE/ FEP. Notons que la charge positive ne se décharge pas.



Figure IV.20. Profil de charge d'espace et du champ électrique : cas de polarisation (a), cas de dépolarisation (b).

c. Champ électrique appliqué E=20 kV/mm

Le profil de polarisation (figure IV.21.a) montre qu'au début de la polarisation, aucune charge significative n'est mesurée dans les deux couches des diélectriques, puis avec le temps, nous notons une charge positive qui s'accumule à l'interface diélectrique LDPE/ FEP. Cette charge est certainement due aux trous injectés de l'anode qui migrent vers la cathode sous l'effet du champ électrique appliqué. Ils se trouvent bloqués à l'interface diélectrique LDPE/FEP.

Le profil de dépolarisation (figure IV.21.b) ne montre pas d'accumulation de charge dans la couche LDPE a coté de l'électrode Ex anode comme il a été observé sous champ plus faible (polarisation sous E= 8.6 KV/mm, E= 14.3 KV/mm). On peut supposer que l'injection de porteurs de charges négatives de la cathode vient compenser ces charges positives.



Figure IV.21. Profil de la charge d'espace et du champ électrique : (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

d. Discussion sur les effets de champ

D'après les résultats obtenus, il semble que : l'injection des électrodes dépend fortement de la valeur du champ électrique appliquée ; que le champ électrique accélère les porteurs de charge positive ; et enfin que sous l'effet d'un fort champ appliqué le volume du diélectrique LDPE transporte plus facilement la charge positive.

Afin d'évaluer les quantités de charge positives accumulées à l'interface diélectrique LDPE / FEP pour différentes valeurs du champ électrique appliqué, nous calculons les valeurs absolues les charges positives à l'interface diélectrique LDPE / FEP en dépolarisation. Les valeurs obtenues sont présentées en figure IV.22.



Figure IV.22. L'évolution en fonction du temps de dépolarisation de la charge interfaciale injectée pour différentes valeurs du champ appliqué.

(La charge interfaciale positive est obtenue par l'intégrale du profil de dépolarisation).

Il est clair que, dès que le champ électrique augmente, la quantité de la charge interfaciale augmente ce qui signifie que l'injection des électrodes dépend fortement de la valeur du champ appliqué.

e. Comparaisons avec Maxwell - Wagner

Il est clair que la quantité de charge due à la polarisation de Maxwell -Wagner est négligeable par rapport à la quantité de charge d'espace mesurée pour la même valeur du champ électrique appliquée E = 14.3 kV/mm, ce qui signifie que la charge mesurée est due à l'injection des électrodes et non pas à l'effet de Maxwell-Wagner (voir figure IV.23).



Figure IV.23. Comparaison entre la charge interfaciale injectée pour différentes valeurs du champ appliquée et la charge due à la polarisation de Maxwell -Wagner.
IV.4.3 Effet de la température sur la dynamique de la charge d'espace

Cette étude rend compte de l'évolution de la charge d'espace dans deux couches de LDPE/FEP (250 μ m, 100 μ m) soumis au champ électrique 14.3 kV/mm, pour trois températures 20° C, 40° C, 60° C et des périodes d'application de la tension d'une heure (polarisation négative et positive).

IV.4.3.1 Polarisation sous une tension négative

La configuration de mesure choisie est : / Anode (Al) / LDPE/ FEP/ Cathode (SC). Les épaisseurs des échantillons sont : $d_{LDPE} = 0.25$ mm, $d_{FEP} = 0.1$ mm et la tension appliquée est V= -5 kV/mm.

a. Mesure à la température de 20° C

La figure IV.24.a, montre qu'aux premiers instants de la polarisation, aucune charge n'est mesurée dans tout le volume du diélectrique, puis, après 5 mn de polarisation, une faible quantité de charge interfaciale positive est détectée. Pour le profil du champ électrique figure .IV.24.a, on voit clairement que le champ augmente dans la couche FEP et diminue un peut dans la couche LDPE.

Pour le profil de dépolarisation (figure IV.24.b) on observe une charge positive distribuée dans le volume du diélectrique LDPE avec un maximum à coté de l'interface diélectrique LDPE/ FEP. Aucune charge négative n'a été mesurée dans les deux diélectriques.



Figure IV.24. Profil de la charge d'espace et du champ électrique à température T=20° C, (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

b. Mesure à la température de 40° C

Le profil de polarisation (figure IV.25.a), montre qu'à la température $T=40^{\circ}$ C, la charge interfaciale augmente largement avec l'augmentation de la durée de la polarisation. La figure. IV.25.a, montre encore une diminution du champ électrique dans la couche de LDPE prés de l'anode, et une augmentation de champ dans la couche FEP prés de la cathode. La diminution du champ électrique dans la couche LDPE est due à une accumulation de la charge d'espace à cet endroit.

Pour le profil de dépolarisation (figure IV.25.b), nous remarquons que la charge positive est moins importante dans la couche LDPE en comparant à l'expérience précédente (mesure sous température $T=20^{\circ}$ C). Ceci pourrait signifier qu'à des températures élevées le volume du diélectrique transporte plus facilement les porteurs de charges .En plus, on observe une faible quantité de charge positive accumulée dans la couche FEP. Ce qui peut signifier qu'à $T=40^{\circ}$ C, la conductivité de FEP augmente, et par conséquents une partie de ces trous traversent l'interface LDPE/FEP pour s'accumuler dans la couche FEP.

Notons que la charge interfaciale se décharge assez rapidement.



Figure IV.25. Profil de la charge d'espace et du champ électrique à température T=40° C, (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

c. Mesure à température de 60° C

Le profil de polarisation (figure IV.26.a) montre qu'aux premiers instants de polarisation, une faible charge positive est détectée à l'interface diélectrique LDPE/FEP. Après quelques instants, cette charge augmente avec la durée de polarisation. En fait, les mesures indiquent que le champ diminue dans le polyéthylène basse densité LDPE, et augmente dans le copolymère d'éthylène propylène fluoré FEP.

Pour le profil de dépolarisation (figure IV.26.b), là aussi, on remarque qu'aucune charge n'est mesurée dans la couche LDPE. On suppose qu'à T=60° C, le volume du LDPE transporte plus facilement les charges. Dans la couche FEP, on observe une charge positive, la quantité de cette charge est plus importante que celle de la charge accumulée à T =40° C dans la même couche FEP (voir l'essai précédent). Aucune charge négative n'est détectée dans les deux diélectriques.

Notons que la décroissance de la charge interfaciale est plus rapide à comparant aux deux essais précédents.



Figure IV.26. Profil de la charge d'espace et du champ électrique à température T=60° C, (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

d. Discussion

Dans toutes les mesures précédentes, nous notons clairement l'accumulation d'une charge positive à coté de l'interface diélectrique LDPE/FEP. L'accumulation de la charge interfaciale est prévue selon la théorie de Maxwell- Wagner, en raison du fait que la conductivité de FEP est très faible devant la conductivité du LDPE $\sigma_{LDPE} = 62.93$. σ_{FEP} . En effet, quand les trous se déplacent sous l'effet d'un champ électrique, ils se trouvent bloqués sur les parois du LDPE ; ce blocage crée une accumulation de la charge positive à l'interface. Cette charge ne peut pas traverser facilement l'interface FEP, à cause de la discontinuité de la conductivité (la conductivité du FEP est très inférieure à la conductivité du LDPE). La charge de l'interface augmente le champ électrique dans la couche FEP et diminue le champ dans la couche LDPE. L'importance de la charge interfaciale détectée augmente avec l'augmentation de la température, (figure IV.26).

Afin dévaluer les quantités de charges positives accumulées à l'interface diélectrique LDPE/ FEP pour différentes valeurs de température, nous calculons les valeurs absolues des charges positives distribuées aux interfaces diélectriques LDPE/FEP. Les résultats obtenus sont présentés dans la figure IV.27.



Figure IV.27. Evolution en fonction du temps de polarisation de la charge interfaciale mesurée à différentes températures (la charge interfaciale est obtenue par l'intégrale de profil de polarisation).

La figure IV.27, montre la décroissance de la charge positive injectée à l'interface comme suit : $QT_{60^{\circ}} > QT_{40^{\circ}} > QT_{20^{\circ}}$ Il est clair que plus la température augmente plus la quantité de charges accumulées à l'interface diélectrique LDPE/FEP est importante; ce qui est en contradiction avec certains travaux qui montrent que lorsque la conductivité des LDPE et FEP sont différentes, une grande quantité de charge interfaciale est prévue aux températures plus basses [64]. Nos résultats sont cependant en accord avec des résultats très récents de la littérature comme R.Bodega [39]

La conductivité étant une fonction de la température, il est clair que dès que la température augmente, la conductivité des deux diélectriques augmente. Néanmoins, il y a toujours une discontinuité à l'interface car $\sigma_{T60^\circ LDPE} > \sigma_{T60^\circ FEP}$, et $\sigma_{T40^\circ LDPE} > \sigma_{T40^\circ FEP}$.

Nous remarquons encore que plus la température augmente plus la conductivité de l'isolant est importante, et plus la durée d'accumulation de la charge est courte en cas de polarisation, (et plus le temps de la décharge de l'interface est faible en cas de dépolarisation).

La figure IV.28, montre qu'à des températures élevées, la décroissance de la charge positive est plus rapide que la décharge à des températures basses, ce qui signifie que la température rend plus facile le déplacement des porteurs des charges.





(La charge interfaciale positive est obtenue par l'intégrale du profil de dépolarisation).

e. Comparaisons avec Maxwell -Wagner

Il est clair que, la quantité de la charge due à la polarisation de Maxwell -Wagner est négligeable par rapport à la quantité de la charge d'espace mesuré pour la même valeur du température T = 20° C, ce qui signifie que la charge mesuré due à l'injection des électrodes et non pas à l'effet de Maxwell-Wagner figure IV.29.



Figure IV.29. Comparaison entre la charge interfaciale injectée à température $T^\circ = 20^\circ$ et la charge due à la polarisation de Maxwell - Wagner

IV.4.3.2 Polarisation sous un tension positive

La configuration de mesure choisie est : / Cathode (Al) / LDPE/ FEP/ Anode (SC). Les épaisseurs des échantillons sont : $d_{LDPE} = 0.25$ mm, $d_{FEP} = 0.1$ mm et la tension appliquée est V= 5 kV/mm

a. Mesure à la température 20°C

Pour le profil de polarisation (figure IV.30.a), nous observons une faible charge positive accumulée dans la couche LDPE à coté de la cathode. L'origine de cette charge est due à l'injection de l'électrode anode, et sous l'effet du champ électrique, ces trous se déplacent vers l'électrode cathode.

Comme nous observons une charge négative accumulée à l'interface diélectrique LDPE/FEP. Cette charge est due à l'injection de l'électrode cathode, et sous l'effet du champ électrique, ces électrons ce déplacent vers l'anode pour se retrouver bloquées à l'interface LDPE/FEP à cause de la discontinuité de la conductivité.

Le profil de dépolarisation (figure IV.30.b) montre clairement l'existence d'une charge positive accumulée à coté de l'électrode Ex cathode, avec une charge négative accumulée à l'interface diélectrique LDPE/FEP. Nous notons que les deux charges positive et négative ne se déchargent pas.



Figure IV.30. Profil de la charge d'espace et du champ électrique à la température T=20° C, (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

b. Mesure à la température 40°C

Le profil de polarisation (figure IV.31.a) montre une charge positive accumulée à coté de l'électrode cathode. Cette charge est due à l'injection de l'électrode anode, et sous l'effet du champ électrique, ces trous se déplacent ver l'électrode cathode. Une forte charge négative accumulée à l'interface diélectrique LDPE/ FEP est observée, avec une faible quantité de charge accumulée dans la couche FEP. Ces charges négatives sont dues à l'injection de l'électrode cathode et sous l'effet du champ électrique, ces électrons se déplacent vers l'anode. Une partie importante de cette charge se trouve bloquée à l'interface diélectrique LDPE / FEP, et une faible quantité de la charge traverse l'interface pour être piégée dans la couche FEP le profil de dépolarisation figure IV.31.b, montre la charge négative interfaciale LDPE/FEP puisse se décharge mais par contre il n ya pas de décharge de diélectrique au niveaux de l'interface métal/diélectrique LDPE .



Figure IV.31. Profil de la charge d'espace et du champ électrique à la température T=40° C, a) cas de polarisation , b) cas de dépolarisation .

c. Mesure à la température 60° C

Le profil de polarisation (figure IV.32.a), montre qu'à l'interface diélectrique LDPE/FEP et dans la couche FEP, la charge négative augmente nettement avec l'augmentation de la durée de polarisation. Le déplacement des pics des charges (figure IV.32.a) est du au changement de la pression durant les essais ainsi qu'à la dilatation thermique du matériau.

Le profil de dépolarisation figure(IV.32.b) montre clairement l'existence d'une faible charge positive distribuée dans le volume de diélectrique LDPE avec un maximum à coté de l'électrode Ex cathode, Le profil montre aussi une quantité importante d'une charge négative à l'interface diélectrique LDPE/FEP qui décroit très rapide, s'il on compare par la décroissance de la charge positive piégé dans la couche LDPE à coté de l'électrode (Al).



Figure IV.32. Profil de charge d'espace et du champ électrique à la température T=60° C, (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

d. Calcul de la dilatation thermique

Il est connu que les matériaux plastiques ont un coefficient de dilatation important. Sous l'effet de la température, plus ou moins par rapport à la température de consigne, l'échantillon aura tendance à se dilater ou à se rétracter. La variation de la longueur (Δ L), aura pour valeur :

 $\Delta L = L. \lambda. \Delta T$

 λ : coefficient de dilatation thermique. ΔT : variation de la température T. $T_0=25^\circ$ C température ambiante à t= 0 s

T=60° C température à t= 60 s

Dans laquelle le coefficient de dilatation du LDPE et du FEP est égal à 0.2 mm/m° C.

Dans notre cas le diélectrique est constitué de deux films de LDPE et FEP d'une épaisseur totale de 0.35 mm à température $T^\circ = 25^\circ$ C.

A une température de 60° C, le film mesurera 0.357mm (allongement de 7 μ m).

e. Discussion

L'existence des charges positives et négatives distribuées dans les deux diélectriques montre clairement que l'injection est produite par les deux électrodes. La quantité de charges négatives injectée à T=60° C et à T= 40° C est plus grande que la quantité de charges négatives injectées à T=20° C. La quantité de la charge positive accumulée dans la couche LDPE à température T = 20° C est plus grande que la quantité de la charge positive accumulée à T=40° C et à T=60° C. On suppose qu'à T= 40° C et T= 60° C la quantité de la charge positive est compensée largement par les électrons injectés de la cathode. Nous remarquons aussi que la décroissance de la charge négative est plus rapide que la décroissance de la charge positive. On suppose que la mobilité des électrons dans le LDPE est plus grande que la mobilité des trous dans le LDPE.

Afin d'évaluer les quantités de charges négatives accumulées à l'interface du diélectrique LDPE /FEP pour différentes valeurs de température, nous calculons les valeurs absolues des charges négatives distribuées à l'interface du diélectrique LDPE/FEP.

Les valeurs obtenues pour chaque courbe sont présentées à la figure IV.33.

Nous constatons que la charge négative à l'interface du diélectrique LDPE/FEP augmente avec l'augmentation de la température. Il est clair qu'aux premiers instants de la polarisation, la charge interfaciale mesurée est négligeable, puis avec l'augmentation de la durée de polarisation, la charge

augmente rapidement avec l'augmentation de la température. On suppose que sous l'effet de l'agitation thermique, les électrons sont extraits plus facilement du métal.

De plus, sous l'effet de la température, les chaînes glissent les unes sur les autres, ces mouvements facilitent le déplacement des charges dans le volume. La décroissance de la charge négative injectée à 60° C est plus rapide que la décroissance de la charge injectée à 40° C et 20° C, ce qui peut signifier que à des températures élevées le déplacement des porteurs de charges positive et négative régie par les mouvement des chaines des polymères.



Figure IV. 33. Evolution en fonction du temps de la charge interfaciale mesurée pour différentes valeurs de températures : (a) polarisation, (b) dépolarisation.

f. Comparaisons avec Maxwell - Wagner

Il est clair que, la quantité de la charge due à la polarisation de Maxwell -Wagner est très faible par rapport à la quantité de la charge d'espace mesurée pour la même valeur de température $T=20^{\circ}$ C ce qui signifie que la charge mesurée est due à l'injection des électrodes et non pas à l'effet de Maxwell-Wagner figure IV.34.



Figure IV.34. Comparaison entre la charge interfaciale injectée par différents valeurs des températures et la charge due à la polarisation de Maxwell - Wagner

IV.5 Essais après vieillissement thermique et électrique

L'échantillon que nous avons utilisé dans cette expérience, à été déjà vieilli sous un champ électrique de 14.3 kV/mm pendant une heure de polarisation et sous une température de T=60° C, puis en état de court circuit sous la même température et pendant 30h. Après 30h de relaxation, toutes les charges injectées sont déchargées, l'enceinte thermique à été refroidi à une température de T=25° C , puis les mesures ont été faites pendant une heure sous un champ de 14.3 kV/mm , puis on état de court circuit pendant 60 mn . Les résultats obtenus sont représentés à la figure IV.35.

Le profil de polarisation (figure IV.35.a), montre qu'à l'interface diélectrique LDPE/FEP, la charge négative augmente largement avec la durée de polarisation avec une faible quantité de charge négative accumulée dans la couche FEP à coté de l'anode. Cette charge négative est due aux électrons extraits de la cathode, est sous l'effet du champ électrique, ces électrons se déplacent vers l'anode pour trouver une quantité importante de ces charges bloquées à l'interface diélectrique LDPE/FEP à cause de la discontinuité de la conductivité.

Le profil de dépolarisation (figure IV.35.b) montre clairement l'existence d'une faible quantité de charge positive accumulée à coté de l'électrode Ex cathode et à coté de l'interface diélectrique LDPE / FEP. Cette charge ne se décharge pas en général.

A l'interface diélectrique LDPE / FEP on voit une quantité importante de la charge négative avec une faible quantité de charge négative dans la couche FEP. Nous remarquons que cette charge ne se décharge pas beaucoup si l'en compare de l'essai mesure à $T = 60^{\circ}$ C.



Figure IV. 35. Profil de charge d'espace et du champ électrique à la température T=25° C, (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

Une comparaison du comportement de la charge interfaciale, pour un même diélectrique, à deux températures différentes, est réalisée. Pour cela, nous évaluons les quantités de charges interfaciales obtenues pour chaque température (figure IV.36).

La figure IV.36.a, montre que la quantité de charge interfaciale injectée à T= 25° C est plus faible que celle de la charge interfaciale injectée à T= 60° C (figure IV.36.b), ce qui signifie que les pièges formés pendant la polarisation à T= 60° C ne reste pas stable même après la décharge complète de l'échantillon et même à la température ambiante 25° C.

La décroissance rapide de la charge interfaciale à $T=60^{\circ}$ C figure (IV.36.b), signifiée que à des températures élevées les chaines du polymère mouvée les unes sur les autres, ces mouvement facilite le déplacement des porteurs de charges positives et négatives.

A la température ambiante, la charge interfaciale ne se décharge pas rapidement ce qui peut signifier qu'aux basses températures les mouvements des porteurs des charge sont réduits.



Figure IV.36. L'évolution en fonction du temps de polarisation (a), et de dépolarisation (b) de la charge interfaciale injectée pour différentes valeur de températures.

IV.6 Calcul de la profondeur des pièges en fonction de la température

Les distributions des profondeurs de pièges peut être estimée à partir des courbes d'affaiblissement de charges suivant l'approche de L.A. Dissado [58-59].

IV.6.1 Polarisation sous tension négative

La configuration de mesure est comme suit : Anode(Al)/ LDPE (0.25mm) / FEP (0.1mm)/ Cathode (SC).

IV.6.1.1 Mesure à T= 40° C

Les figures (IV.37.a), (IV.37.b) montrent les profils des charges d'espace en polarisation et dépolarisation. Une comparaison entre les profils du charge on volt-on et volt-off montre clairement qu'il y a une quantité du charge disparu rapidement presque juste après le déplacement de la tension appliqué. En particulier la charge positive à coté de l'électrode Ex anode, Après 10 jours la charge positive à l'interface LDPE/FEP reste constante, ceci suggère que la plus part des charges resté dans l'échantillon n'aient pas assez d'énergie pour surmonter la profondeur de piège ceci est confirmé par le profil du champ figure IV.37 qui montre que le champ résiduel à l'interface LDPE/FEP est faible.

Pour calculer la profondeur de pièges de la figure IV.37.b, il faut que la charge doive être complètement extraite du diélectrique, mais en réalité on a toujours une charge qui reste piégé dans le diélectrique, pour cela on prend la première valeur du temps ou la charge reste constante cette première valeur correspond à 10 jours.



Figure IV.37. a. Profil de la charge d'espace en cas de polarisation (40° C, -5kV, t_p=60 mn)



Afin d'évaluer les quantités de charges positives accumulées à l'interface du diélectrique LDPE /FEP pour de température T=40° C, nous calculons les valeurs absolues des charges positives distribuées à l'interface du diélectrique LDPE/ FEP, La charge interfaciale positive est obtenue par l'intégrale du profil de dépolarisation. Les valeurs obtenues sont présentées à la figure IV.38.



Figure VI.38. Profil de la charge interfaciale positive mesuré à la température T=40° C en cas de dépolarisation.

IV.6.1.2 Mesure à T= 60° C

La figure IV.39.a, montre qu'après 5minutes de polarisation la charge positive piégée dans la couche LDPE commence à diminuer tandis que la charge positive à l'interface diélectrique LDPE/FEP augmente rapidement. La diminution de la charge positive à coté de l'anode du à une charge négative injecté, transporté et par la suite piégé à coté de l'anode. Le profil de dépolarisation figure IV.39.b, montre que la charge positive à l'interface disparue rapidement.

Pour calculer la profondeur de pièges de la charge interfaciale présenté à la figure IV.39.b, il faut que la charge doive être complètement extraite du diélectrique, mais en réalité après un temps de 48 heures on a une faible quantité de charge reste stable dans le diélectrique, pour cela on prend la première valeur du temps ou la charge reste constante cette première valeur correspond à 48 heures.







Afin d'évaluer les quantités de la charge interfaciale positive pour une température T= 60° C, nous calculons les valeurs absolues des charges positive distribuées à l'interface du diélectrique LDPE/ FEP. La charge interfaciale positive est obtenue par l'intégrale du profil de dépolarisation. Les valeurs obtenues sont présentées à la figure IV.40.



Figure IV.40. Profil de dépolarisation pour des charges positives : mesuré à $T = 40^{\circ}$ C,

Une comparaison du comportement de la charge interfaciale mesuré à deux températures différentes, a été réalisée T=40° C, et T= 60° C. La figure IV.41, montre les quantités de charges interfaciales obtenues pour chaque température, il est claire que le temps de décharge de la charge positive mesuré à T= 40° C est plus importent que le temps de décharge de la charge positive mesuré à T= 60° C.



Figure IV.41. Profil de la charge interfaciale positive injecté à la température T=60° C, 40° C en cas de dépolarisation).

IV.6.1.3 Calcul de la profondeur des pièges mis en jeu

Notons que la charge positive estimée, dans le cas de la polarisation négative sous les deux températures $T=40^{\circ}$ C et 60°C est concentrée sur l'interface diélectrique LDPE.

Pour calculer la profondeur minimale et maximale des piéges mis en jeu nous utilisons le modèle de Dissado [60-61].

Nous avons déjà introduit le mode de calcul qui nous permet d'approcher la valeur numérique de la profondeur des pièges concernés par les processus de décharge analysés chapitre III.

Dans le cas des essais à 40°C, nous remarquons que la charge positive reste constante à partir de t_2 =864000 s.

Dans le cas des essais à 60°C, nous remarquons que la charge positive reste constante à partir de $t_2 = 172800$ s.

Nous déduisons les valeurs des profondeurs de piège Δ_{\min} et Δ_{\max} :

Tableau IV.1Valeurs de la profondeur de piège Δ_{min} et Δ_{max} estimée a partir du modèle deDissado pour des charges positives et deux valeurs de températures

Température	Δ_{\min} (eV)	$\Delta_{\rm max}$ (eV)
T=40° C	0.881	1.17125
$T=60^{\circ} C$	0.8687	1.4678

À des températures différente il ya aucune proportionnalité entre le temps de libéré les pièges (temps de décharge complet de la charge) et la valeur de la profondeur du piège, ce la est clair au Tableau IV.1 qui montre que la profondeur de la charge extrait à $T = 60^{\circ}$ C est plus important que la profondeur de la charge extrait à $T = 60^{\circ}$ C est plus important que la profondeur de la charge extrait à $T = 40^{\circ}$ C, alors que le temps de libéré les pièges à $T = 60^{\circ}$ C ($t_2 = 172800$ s) est moins important que le temps de libéré les pièges à $T = 40^{\circ}$ C ($t_2 = 864000$ s).

Nous constatons que la profondeur de pièges ne dépend pas seulement du temps de libéré les pièges (temps de décharge) mais aussi de la température de décharge.

IV.6.2 Polarisation sous tension positive

A la figure IV. 42.a, on a observer une charge négative à l'interface augmente avec le temps de polarisation, on a également noté que toute la charge négative à proximité de la cathode disparue après 30 minutes et à été remplacé par un peu de charge positive. la charge positive peut être injecté de l'anode , transporté et par la suite piégé à coté de la cathode.

La même estimation de la profondeur des pièges mis en jeu a été faite pour une tension de polarisation positive, et une température de 60°C.

Pour calculer la profondeur de pièges de la charge interfaciale présentée à la figure IV. 42. b, il faut que la charge doive être complètement extraite du diélectrique, mais en réalité après un temps de 30 heures on a une faible quantité de charge reste stable dans le diélectrique, pour cela on prend la première valeur du temps ou la charge reste constante cette première valeur correspond à 30 heures.





Figure IV.42. b. Profil de la charge d'espace en cas de dépolarisation (60° C, 5kV, t_r=30heures)

Figure IV.42. c. Profil du champ électrique en cas de dépolarisation (60° C, 5kV, t_r=30heures) Afin d'évaluer les quantités de la charge interfaciale négative pour une température $T=60^{\circ}$ C, nous calculons les valeurs absolues des charges négatives distribuées à l'interface du diélectrique LDPE/ FEP. La charge interfaciale négative est obtenue par l'intégrale du profil de dépolarisation. Les valeurs obtenues sont présentées à la figure IV.43.



Figure IV. 43. Profil de dépolarisation pour une charge négative mesurée à $T=60^{\circ}$ C Une comparaison du comportement de la charge interfaciale, pour deux types de charges positives et négatives, a été réalisée. La figure IV.44, montre les quantités de charges interfaciales positives et négatives obtenues pour une même température $T=60^{\circ}$ C. Il est claire que le temps de décharge de la charge positive est plus importent que le temps de décharge de la charge négative.



Figure IV.44. Profil de la charge interfaciale négative injecté à la température T=60° C, 40° C en cas de dépolarisation

Dans le cas de la polarisation sous tension positive, à la température T= 60° C, nous remarquons que la charge négative reste constante à partir de t₂ =109800 s.

Pour la polarisation sous tension négative à la température T=60° C, nous constatons que la charge positive reste constante à partir de $t_2 = 172800$ s.

Tableau IV.2 Valeurs de la profondeur de piège Δ_{min} et Δ_{max} estimée a partir du modèle de Dissado pour les deux types de charges négatives et positives

T=60° C	Δ_{\min} (eV)	Δ_{\max} (eV)
Charge négative	0.8687	1.188
Charge positive	0.8687	1.4678

La charge positive est piégée plus sur des pièges plus profonds ceci est cohérent avec les résultats du chapitre III.

IV.7 Essais sous polarisation inversée

IV.7.1 Polarisation négative -5kV suivie d'une polarisation positive +5kV

La configuration de mesure à été choisie comme suit : Anode (Al) / LDPE/ FEP/ Cathode (SC). Les épaisseurs des échantillons sont : $d_{LDPE} = 0.25$ mm, $d_{FEP} = 0.1$ mm. La tension appliquée est V= -5 kV (14,3 kV/mm) pendant une heure et la température est de 40°C.

Les résultats obtenus sont donnés à la figure IV.45.a et IV.45b.

Le profil de polarisation (figureIV.45.a) montre l'existence d'une charge positive accumulée à coté de l'interface diélectrique LDPE/FEP. Cette charge augmente nettement avec l'augmentation de la durée de polarisation. L'origine de cette charge est l'injection de l'électrode anode des trous, et sous l'effet du champ électrique, ces trous se déplacent vers la cathode pour qu'ils se trouvent bloqués à l'interface diélectrique LDPE/FEP, à cause de la discontinuité de la conductivité.

Pour le profil du champ électrique, nous constatons qu'aux premiers instants de polarisation, le champ électrique est plus important dans la couche LDPE que dans la couche FEP, puis avec l'augmentation du temps de polarisation, le champ électrique est s'inversé, il devient plus important dans la couche FEP que dans la couche LDPE.

Le profil de dépolarisation (figure IV.45.b) est obtenu juste après 20 s de court circuit. Cette figure montre l'existence d'une forte charge interfaciale, avec une faible quantité de charge positive accumulée dans la couche FEP.

Dans la couche LDPE on voit une faible quantité de charge positive accumulée à l'interface cathode / LDPE. Dans le volume de diélectrique LDPE, nous remarquons qu'aucune charge n'est mesurée, ce qui signifie que le volume du diélectrique LDPE transporte plus facilement les charges positives.



Figure IV.45. Profil de la charge d'espace et du champ électrique à la température T=40° C, (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

Après une minute de dépolarisation, nous inversons le sens de polarisation de telle façon que les deux films soient polarisés sous l'effet d'une tension positive.

Les deux films son soumis de nouveau à un champ électrique -14.3 kV/mm pendant une heure de polarisation dans un environnement chauffé à T=40°C (figure IV.46.a), puis en état de court circuit pendant 4 heures (figure IV.46.b).

Le profil de polarisation (figure IV.46.a), montre, aux premiers instants de polarisation, une charge positive accumulée à l'interface diélectrique LDPE/FEP. Cette charge se compense rapidement par les électrons injectés de la cathode jusqu'à ce qu'elle s'annule à t=2 min. Puis avec le temps, le signe de la charge interfaciale s'inverse. Il est clair que la charge négative interfaciale est très importante par rapport au cas de polarisation sous tension négative, ce qui peut signifie que le passage d'une polarisation sous une tension négative à une polarisation sous une tension positive fait augmenter la

quantité des pièges à l'interface diélectrique LDPE/FEP. Nous observons aussi une faible charge positive accumulée à coté de la cathode, cette charge est due aux trous injectés de l'anode.

Pour le profil du champ électrique, nous observons qu'aux premiers instants de polarisation, le champ électrique est plus important dans la couche LDPE que dans la couche FEP, puis avec l'augmentation de la durée de polarisation, le champ électrique s'inverse et devient plus important dans la couche FEP que dans la couche LDPE.

Pour le profil de dépolarisation (figure IV.46.b), nous observons une faible quantité de charge positive accumulée dans la couche LDPE avec son maximum à coté de la cathode, cette charge ne se décharge pas, même après 4heures de temps. Dans la couche FEP, une faible quantité de charge négative est observée.

A l'interface diélectrique LDPE/FEP remarquons par contre, une charge négative importante qui se décharge lentement.



Figure IV. 46. Profil de la charge d'espace et du champ électrique à la température T=40° C, (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

Afin d'évaluer les quantités de la charge interfaciale positive et négative pour une température T=40° C, nous calculons les valeurs absolues des charges positives et négatives distribuées à l'interface du

diélectrique LDPE/ FEP. La charge interfaciale est obtenue par l'intégrale du profil de la charge en cas polarisation figure IV.46. Les valeurs obtenues sont présentées à la figure IV.47.



Figure IV.47. Profil de la charge interfaciale positive et négative injecté à la température T=40° C, en cas de polarisation sous une tension négative puis positive

Il est clair que la quantité de la charge interfaciale négative en cas de polarisation sous une tension positive (courbe bleu) est plus importante que la quantité de la charge interfaciale positive en cas de polarisation sous une tension négative (courbe rouge).

IV.7.2 Polarisation positive +5kV suivie d'une polarisation -5kV

La configuration de mesure à été choisie comme suit : Cathode (Al) / LDPE/ FEP/ Anode (SC). Les épaisseurs des échantillons sont : $d_{LDPE} = 0.25$ mm, $d_{FEP} = 0.1$ mm. La tension appliquée est V= -5 kV/mm (14,3 kV/mm) pendant 1 heure à T= 40°C.

Les résultats obtenus sont présentés dans les figures IV.48.a et IV.48.b.

La figure IV.48.a, montre une faible quantité de charges positives accumulées à coté de la cathode. Cette charge est due aux trous injectés de l'anode, et sous l'effet du champ électrique appliqué ces trous se déplacent de l'anode vers la cathode.

A l'interface diélectrique LDPE/ FEP, on remarque une faible quantité de charge négative qui augmente avec la durée de polarisation.

Le profil de dépolarisation (figure IV.48.b) est enregistré après 20 s de court circuit. Nous ne notons aucune charge mesurée dans le volume de diélectrique, ce qui signifie que le volume transporte facilement les charges car le volume ne présente pas de pièges. A l'interface cathode /LDPE, on voit

une faible quantité de charges positives ce qui montre que l'interface comporte des pièges a cause de liaisons cassées des chaînes moléculaire pliées.

Après une minute de dépolarisation, nous inversons le sens de polarisation de telle façon que les deux films soient polarisés sous l'effet d'une tension négative.



Figure IV. 48. Profil de la charge d'espace et du champ électrique à la température T=40° C, (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

Les deux films sont soumis de nouveau à un champ électrique de 14.3 kV/mm pendant une heure de polarisation dans une enceinte thermique à $T=40^{\circ}$ C (figure IV.49.a), puis en état de court circuit pendant 4 heures (figure IV.49.b).

Pour le profil de polarisation (figure IV.49.a) on voit dans la couche LDPE une quantité de charges positives, cette charge diminue en fonction du temps de polarisation. A l'interface diélectrique LDPE/FEP, nous observons la charge négative initiale qui se compense largement avec les trous injectés de l'anode, à t=5 mn la charge positive est neutralisée et la charge interfaciale positive augmente avec l'augmentation de la durée de polarisation. Pour le profil du champ électrique, on voit clairement que pendant les premiers instants de polarisation, le champ électrique est plus important dans

la couche LDPE, puis à cause de l'accumulation de la charge à l'interface, il s'inverse (suivant l'inversion du signe de la charge interfaciale) et il devient plus important dans la couche FEP où la conductivité et plus faible, que dans la couche LDPE où la conductivité est plus forte.

Le profil de dépolarisation (figure IV.49.b) montre que dans la couche LDPE, la présence d'une faible charge positive après 4 heures de relaxation, ce qui signifie que quand les électrons quittent les trous, la charge positive devient plus détectable (visible).

A l'interface diélectrique LDPE/FEP, nous observons une forte charge positive qui diminue assez rapidement avec le temps de relaxation.



Figure IV.49. Profil de la charge d'espace et du champ électrique à la température T=40° C, (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

Afin d'évaluer les quantités de charges négatives et positives accumulées à l'interface du diélectrique LDPE /FEP pour une température T= 40° C, nous calculons les valeurs absolues des charges négatives et positives distribuées à l'interface du diélectrique LDPE/FEP.

Les valeurs obtenues pour chaque courbe sont présentées à la figure IV.5.



Figure IV.50. Profil de la charge interfaciale négative et positive injecté à la température T=40° C, en cas de polarisation sous une tension positive puis négative

Nous constatons que la charge positive accumulée à l'interface du diélectrique LDPE/FEP en cas de polarisation sous une tension négative (courbe bleu) est plus importante que la charge négative accumulée à l'interface du diélectrique LDPE/FEP en cas de polarisation sous une tension positive (courbe rouge).

V.7.3 Discussion

Pour le même diélectrique l'inversion de la polarisation ne donne pas la même quantité de charge interfaciale, car les quantités des charges interfaciales positives (trous) et négatives (électrons) dépendent de l'injection des électrodes (Al). L'existence de la charge interfaciale soit positive ou négative favorise l'injection de l'électrode (Al) à cause des forces d'attraction entre la charge interfaciale et l'électrode (Al) après l'inversion de la polarité, car le signe de la charge interfaciale et celui de l'électrode (Al) sont toujours de signe opposé ou premier moment de l'inversion de la polarité. De même l'inversion de la polarisation augmente la formation et le remplissage des pièges peu profonds à l'interface.

IV.8 Mesure à 4 heures de polarisation

IV.8.1 Polarisation sous tension positive à T=20° C, E=14.3 kV/mm

Le profil de polarisation (figure IV.51.a) montre que dans la couche LDPE on ne voit pas de charge positive en comparant par rapport à l'essai de courte durée (figure IV.11), ce qui peut signifie qu'à des essais de longues durée et sous l'effet d'une tension de polarisations positive, la quantité des électrons injectée est plus grande que la quantité des trous injectée ce qui montre que les trous se compensent nettement avec les électrons. La figure. IV.51.a, montre encore une diminution du champ électrique dans la couche de LDPE prés de la cathode, et une augmentation de champ dans la couche FEP prés de l'anode. La diminution du champ électrique dans la couche LDPE est due à une accumulation de la charge d'espace à cet endroit.

Pour le profil de dépolarisation (figure IV.51.b) il apparaît qu'aucune charge positive n'est détectable dans la couche LDPE. A l'interface diélectrique LDPE/FEP on voit une charge négative importante, qui décroît lentement avec le temps de dépolarisation



Figure IV.51 Profil de la che $a^{\text{Epaisseur [mm]}}$ space et du champ électrique à $a^{\text{Epaisseur [mm]}}$ ature $T=20^{\circ}$ C, (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

IV.8.2 Polarisation sous tension négative à T=20° C, E=-20 kV/mm

Dans le cas du profil de polarisation (figure IV.52.a), nous remarquons une charge positive accumulée à l'interface diélectrique LDPE/FEP. Cette charge augmente largement avec l'augmentation de la durée de polarisation.

Nous observons que le champ électrique devient plus important dans la couche FEP après une heure de polarisation, encore le champ électrique dans la couche LDPE est diminue. La diminution du champ électrique dans la couche LDPE est due à une accumulation de la charge d'espace à cet endroit.

Pour le profil de dépolarisation (figure IV.52.b) nous remarquons qu'aucune charge n'est mesurée dans le volume du diélectrique LDPE, ce qui signifie que le volume transporte plus facilement les charges (absence des pièges). A l'interface LDPE / cathode, on remarque une faible quantité de charges positives qui diminue lentement. Le piégeage de la charge à l'interface signifiée la nature physique de l'interface qui comporte des pièges a cause de liaison cassée, des chaînes pliées....

A l'interface diélectrique LDPE/FEP, nous observons une charge interfaciale positive. Cette charge ne se décharge pas, pendant une heure de temps de court circuit. Dans la couche FEP, on constate une faible quantité de charges positives due aux trous traversant l'interface.



Figure IV. 52. Profil de la charge d'espace et du champ électrique à la température T=20° C, (a) cas de polarisation, (b) cas de dépolarisation.

IV.9 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons étudié l'évolution de la charge d'espace dans deux couches de diélectriques différents : polyéthylène basse densité LDPE et le copolymère d'éthylène propylène fluorée FEP soumis à une contrainte électrique CC. Nous avons étudié l'effet des interfaces électrode /polymère et polymère /polymère sur les caractéristiques de piégeage dans les isolants LDPE et FEP. Les résultats obtenus nous permettent de tirer les conclusions suivantes :

- Quand deux matériaux ont des conductivités différentes, une accumulation d'une charge à l'interface diélectrique LDPE/FEP a lieu.
- Le matériau de l'électrode à un effet significatif sur la formation de la charge interfaciale.
- L'injection des électrodes dépend fortement de la valeur du champ électrique appliqué.
- Le champ électrique accélère la vitesse des porteurs des charges.

• Sous l'effet d'un fort champ électrique appliqué le volume de diélectrique LDPE transporte facilement la charge positive.

On peut également conclure que la température a de nombreux effets sur la dynamique des charges d'espace et influe sur l'injection de charges, la mobilité des charges, la conduction électrique, le piégeage et le dépiégeage.

Nous avons constaté également que:

- Les températures élevées ont un effet significatif sur le remplissage des pièges peu profonds dans les interfaces diélectriques
- L'injection des électrodes augmente avec l'augmentation de la température
- A des températures élevées, les mouvements des chaînes des polymères facilitent le déplacement des porteurs des charg

Conclusion

Dans cette étude nous avons étudié l'évolution de la charge d'espace dans deux couches de XLPE, soumis à la contrainte électrique CC, Nous avons étudié le comportement de remplissage d'électrode/XLPE et d'interfaces physiques de XLPE/XLPE utilisant la technique électroacoustique pulsée. Les peaux de XLPE étaient exemptes des sous-produits de réticulation absolue. En conséquence, la distribution de charges d'espace a été dominée par l'injection des électrodes. La charge accumulée dans le diélectrique dépend de la nature de l'électrode, étant le polyéthylène chargé par le carbone, d'or, et d'aluminium. Les électrodes d'aluminium et d'or pouvaient injecter des électrons et des trous mais le taux d'injection est beaucoup inférieur pour l'or. Les électrodes Semi-conductrice étaient l'injecteur le plus efficace pour les porteurs électroniques. Bien qu'un certain rapport puisse exister entre la fonction de travail du métal et le taux d'injection pour des électrons, il ne fournit pas une explication pour l'injection de trou. Les états d'interface assurent probablement la fonction de travail pour contrôler l'injection de charge. L'interface diélectrique/diélectrique lisse n'est pas vue comme emplacement préférentiel de piégeage pour des porteurs. Le transport de charge semble se produire facilement d'une couche à l'autre. Une interface chargée avec les porteurs positifs ou négatifs est affectée par transport de charge d'autant plus que la température est augmentée. La charge interfaciale peut être compensée et/ou recombinée par les charges de la polarité opposée qui ont croisé une couche. La dissipation de la charge pendant la dépolarisation montre que l'interface diélectrique/diélectrique fournit des pièges plus profonds pour les charges positives que pour les charges négatives. Des charges positives sont encore emprisonnées à 60° C après 30 minutes de dépolarisation. Les interfaces physiques constituées par l'association de deux diélectriques identiques ne se conforment pas au comportement habituel de Maxwell-Wagner-Sillas et ces charges d'espaces doivent être prises en considération.

On peut également conclus que la température à des nombreux effets sur la dynamique de charges d'espaces tels que l'injection de charge et leur mobilité.

Dans le chapitre (VI) nous avons étudié l'évolution de la charge d'espace dans deux couches de diélectriques différents : polyéthylène basse densité LDPE et le copolymère d'éthylène propylène fluorée FEP soumis a une contrainte électrique CC. Nous avons étudié l'effet des interfaces électrode /diélectrique et diélectrique /diélectrique sur les caractéristiques de piégeage dans les isolants LDPE et FEP.

Les résultats obtenus nous permettent de tirer les conclusions suivantes :

• Si une discontinuité du diélectrique et des propriétés acoustiques se produit à l'interface diélectrique/diélectrique, le signal fourni par la méthode de PEA correspond directement à la distribution de charges d'espace et non pas à la réflexion des ondes acoustique.

Afin d'évaluer correctement les résultats des mesures de PEA, nous avons présenté :

- Une méthodologie pour l'interprétation des modèles de charges d'espace détectés qui prend en considération la réflexion et la propagation des ondes acoustiques dans les échantillons étudiés.
- Une procédure pour le calibrage du système de mesure qui sert d'utiliser différent facteur de calibrage pour chaque couche de diélectrique étudié. Nous avons expérimentalement observé l'accumulation de charges d'espace aux interfaces diélectriques étudiées.
- Quand deux matériaux ont des conductivités différentes, une accumulation d'une charge à l'interface diélectrique LDPE/FEP a lieu.
- Plus la différence relative entre les conductivités des deux diélectriques formant l'interface est grande, plus la charge accumulée à l'interface diélectrique LDPE/FEP est grande.
- Plus la conductivité d'un des deux diélectriques est haute, plus l'accumulation de charge à l'interface est rapide. Puisque la conductivité augmente avec la température et le champ électrique appliqué, alors plus la température et /ou le champ est haut plus le déplacement des charges est rapides.
- Le matériel de l'électrode à un effet significatif sur la formation de la charge interfaciale.
- L'injection des électrodes dépend fortement de la valeur du champ électrique appliqué.
- Le champ électrique accélère la vitesse des porteurs des charges.
- Sous l'effet d'un fort champ électrique appliqué le volume de diélectrique LDPE transporte facilement la charge positive.

On peut également conclure que la température a de nombreux effets sur la dynamique des charges d'espace et influence l'injection de charges, la mobilité des charges, la conduction électrique, le piégeage et le dépiégeage.

Nous avons constaté également que:

- Les températures élevées ont un effet significatif sur le remplissage des pièges peu profonds dans les interfaces diélectriques.
- L'injection des électrodes augmente avec l'augmentation de la température,
- A des températures élevées, les mouvements des chaînes des polymères facilitent le déplacement des porteurs des charges.
- Pour l'effet de polarité inversé, les résultats expérimentaux prouvent que les profils de charges d'espace mesurés à différentes polarités de tension ne sont pas symétriques, en particulier on a observé le comportement suivant à l'interface diélectrique : la configuration Cathode(Al)/LDPE/FEP/Anode (SC) sous une polarisation positive : une charge négative s'accumule à l'interface LDPE/FEP.
- la configuration Anode (Al)/LDPE/FEP/Cathode (SC) sous une polarisation négative: une charge positive s'accumule à l'interface LDPE/FEP.

Pour le même diélectrique l'inversion de la polarisation ne donne pas la même quantité de charge interfaciale, car les quantités des charges interfaciales positives (trous) et négatives (électrons) dépendent de l'injection des électrodes (Al). L'existence de la charge interfaciale soit positive ou négative favorise l'injection des électrodes à cause des forces d'attraction entre la charge interfaciale et les charges images à l'électrode (Al), car le signe de la charge interfaciale et la charge image à l'électrode (Al) juste après l'inversion de la polarité toujours de signe opposé.

De même l'inversion de la polarisation augmente la formation et le remplissage des pièges peu profonds à l'interface.

Recommandations

Nous avons prouvé que la distribution dynamique de champ électrique peut être prévue (jusqu'à un certain degré) pour deux diélectriques identiques et différents considérant la dépendance de la température et de champ de la conductivité d'isolation.

Cette connaissance peut être employée pour définir les procédures opérationnelles qui réduisent au minimum le champ électrique dans le système de câble pour un certain nombre de conditions de travail.

Par exemple, des conditions de travail critiques peuvent être prévues et les suggestions peuvent être obtenues sur la façon dont réduire au minimum le champ électrique dans le système de câble pour un transport d'énergie donnée.

Dans le suivant, deux exemples pratiques sont donnés. Inversion de polarité Il est bien connu que l'inversion de la polarité de tension sur un câble chargé à courant continu CC mène à un perfectionnement de champ dans l'isolation près du conducteur intérieur. C'est la raison pour laquelle de nos jours la polarité de tension ne peut pas être inversée pour quelques types de câble à CC. Sur de tels systèmes de câble, l'inversion du flux de puissance est faite en inversant la direction de courant plutôt que la polarité de tension. Cependant, une procédure a pu être suivie pour réduire au minimum le champ électrique maximale ensuite l'inversion de polarité et pour raccourcir le temps ce champ relativement élevé est présente dans câble. De cette façon, l'inversion de polarité devient une option faisable également pour les systèmes de câble de haut tension.

Comme exemple du procédé, nous nous servons du fait que la charge d'espace, qui s'accumule dans le câble avant l'inversion de la polarité de tension, est relativement petite, puis le champ créé par les charges d'espace demeure également relativement bas et le champ maximal après que l'inversion de polarité soit contenue. Cette condition peut être obtenue en diminuant la température éprouvée par le câble (c.-à-d. en diminuant le courant) quelques heures avant d'effectuer l'opération d'inversion de polarité. (Par la suite, la tension appliquée peut être augmentée, pour que la la puissance transportée maintien constante). Pour raccourcir le temps où un champ relativement élevé est présent après

l'inversion de polarité, le courant peut être augmenté après l'inversion de polarité. Une augmentation du courant induit une augmentation de la température à travers l'isolation. Ceci favorise l'épuisement des charges d'espaces, puisque la polarité de la tension est maintenant vis-à-vis celle de charges accumulées. (Par la suite, la tension appliquée peut être diminuée, fournissant une diminution additionnelle du champ électrique maximum tandis que la puissance transportée est maintenue constante).
LISTE DES SYMBOLES ET ABBREVIATIONS

Al	Aluminium
e	Charge élémentaire (1.6 10 ⁻¹⁹ C)
Е	Champ électrique (V.m ⁻¹)
А	Constante de Richardson- Schottky ($A = 4\pi .m.k^2 / h^3 = 120A / cm^2$)
k _B	Constante de Boltzmann (1.3806 10 ⁻²³ J.K ⁻¹)
h	Constante de Planck (6.6261 10 ⁻³⁴ J.s)
FEP	Copolymère d'éthylène propylène florée
σ	Conductivité électrique (Ω^{-1} .m ⁻¹)
i	Courent de conduction (A)
a	Distance inter-pièges (m)
ρ	Densité nette de charges (C.m ⁻³)
J	Densité de courant (A/m ²)
E_{V}	énergie de la bande de valence (ev)
E _C	énergie de la bande de conduction (ev)
E_{T}	énergie de la bande interdite (ev)
1	Epaisseur du diélectrique (m)
ν_0	Fréquence d'activation (Hz)
У	$=\frac{h}{2\pi}$
β_s	la constante de Schottky
Р	La probabilité de saut
$\beta_{\it PF}$	la constante de Pool Frenkel
ν	La vitesse de la charge d'espace
φ	l'énergie de la barrière
KT	L'énergie d'activation thermique
Or	L'or
m	Masse électronique (9.11 10 ⁻³¹ kg)
μ_k	Mobilité de l'espèce k $(m^2.V^{-1}.s^{-1})$
dx	Pas dans l'espace (m)
Δt	Pas dans le temps (s)
3	Permittivité du matériau ($\varepsilon = \varepsilon_0 \cdot \varepsilon_r$)

Permittivité du vide (8.8542 10⁻¹² C.V⁻¹.m⁻¹) $\boldsymbol{\epsilon}_{0}$ Permittivité relative du diélectrique $\epsilon_{\rm r}$ XLPE Polyéthylène réticulé Polyéthylène basse densité LDPE Profondeur maximale de pièges Δ_{max} Profondeur minimale de pièges Δ_{min} PEA Pulsed Electro-Acoustic method \mathbf{SC} Semi conducteur Т Température (K) Tension (V) V

- CIGRE Joint Task Force 21/15, "Interfaces in accessories for extruded HV and EHV cables", Electra, N° 203, 2002, pp. 53-59.
- [2] C.Tardieu 'Apport des mesures de luminescence à la compréhension du piégeage et du transport dans les isolants synthétiques', thèse de doctorat, l'Université Toulouse III Paul Sabatier, 2003.
- [3] S.Le roy 'Modélisation numérique des phénomènes de transport électrique dans un isolant polyéthylène sous contrainte électrique'. thèse de doctorat, l'Université Toulouse III Paul Sabatier ,2004.
- [4] C. Thomas. 'Mesures de charges d'espace sous contrainte dynamique par la méthode électroacoustique pulsée', thèse de doctorat, l'Université Toulouse III - Paul Sabatier, 2008.
- [5] M. Meunier, N. Quirke, and A. Aslanides, 'Molecular modeling of electron traps in polymer insulators: Chemical defects and impurities'. The Journal of ChemicalPhysics, 115(6): 2001.pp. 2876-2881.
- [6] M. Meunier. and N. Quirke, '*Molecular modeling of electron trapping in polymer insulators*'. The Journal of Chemical Physics, 2000. 113(1): pp. 369-376.
- [7 L.A.Dissado, J.C.Fothergill' *Electrical degradation and breakdown in polymère*', Peter Peregrinus Ltd, London, United Kingdom, 1992
- [8] H.J.Wintle: 'Conduction processes in polymers "dand" Engineering dieletrics', Vol.II,1983, Ed.Bartnikas/Eichhorn, ASTM STP 783,
- [9] R. H. Fowler, and L. Nordheim, 'Electron Emission in Intense Electrical Field', Proceedings of the Royal Society, vol. 119, 1928, pp. 173.
- [10] J. J. O'Dwyer, '*The Theory of Electrical Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics*' Oxford: Clarendon, 1973.
- [11] M. A. Lampert, and P. Mark, 'Current Injection in Solids'. New York and London: Academic Press, 1970.
- [12] L. A. Dissado, and J. C. Fothergill, '*Electrical Degradation and Breakdown in Dielectrics*'. London: Peter Peregrinus Ltd., 1992.
- [13] R. H. Good, and E. W. Müller, 'Handbuch der Physik', vol. 21. Berlin: S. Flügge (Springer-Verlag), 1956.
- [14] H. Wintle, J. 'Charge motion and trapping in insulators surface and bulk effects'. IEEE transactions on Dielectrics and Electrical Insulation', 1999. 6(1): pp. 3-10.
- [15] R.Coeho, B.Alandenize : 'Les diélectriques : propriétés diélectriques des matériaux isolants', Ed. Hermès, 1993.

[16] N. F. Mott, and R. W. Gurney, '*Electronic Processes in Ionic Crystals*', 2nd edition (reprinted by Dover, New York) ed. London: Oxford U.P., 1948.

- [17] Y.Segui : 'Dielectriques- Courants et Conduction', Techniques de L'ingénieur, D2 301, 2000.
- [18] M. A. Lampert, and P. Mark, 'Current Injection in Solids'. New York and London: Academic Press, 1970.
- [19] C. Laurent., "Diélectriques solides et charge d'espace", Technique de l'ingénieur, Convertisseurs et machines électriques, P2305, 1999.
- [20] Zhuang, H.Z., et al., 'Application of a probability model for relaxation to the dielectric and -relaxation of amorphous polyethylene terephthalate'. Journal of Physics: Condensed Matter, 1998. 10(2): p. 445-449.
- [21] J. Beyer, P. H. F. Morshuis, J. J. Smit, "Investigation on charge and polarization effects at dielectric interfaces in laminated HVDC insulation", Proc. IEEE Conf. Electr. Insul. Diel.Phenom., pp. 32-37, 1999.
- [22] F. H. Kreuger, 'Industrial high DC voltage', Delft University Press, ISBN 90-407-1110-0, 1995.
- [23] K. W. Wagner, 'Erklärung der dielektrischen Nachwirkungsvorgänge auf Grund Maxwellscher Vorstellungen', Archiv für Elektrotechnik II, Vol. 9, 1914, pp. 371-387.
- [24] R. Bodega, P. H. F. Morshuis, E. Redjosentono, J. J. Smit, 'Dielectric interface characterization by means of space charge measurements', Proc. IEEE Conf. on Electr. Insul. Diel. Phenom., 2003, pp. 728-733.
- [25] J. M. Alison, 'The pulsed electro-acoustic method for the measurement of the dynamic space charge profile within insulators', in Space charge in solid dielectric, edit by J. C. Fothergill and L. A. Dissado, ISBN 0-9533538-0-X, 1998, pp. 93-121.
- [26] H. Ahmed, et N. N. Srinivas, '*Review of Space Charge Measurements in Dielectrics*', IEEE Trans. Diel. Elec. Ins., vol. 4, 1997, pp. 644-656.
- [27] O. Gallot-Lavallée, and G. Teyssedre, 'Space Charge Measurement in Solid Dielectrics y the Pulsed Electro-Acoustic Technique', proc. International Conference on Solid Dielectrics, Toulouse, FRANCE, 2004, pp. 268-271.
- [28] R. Bodega, P. H. F. Morshuis, J. J. Smit, 'Space charge signal interpretation in dielectric combinations tested by means of the PEA method', Proc. IEEE Int.Conf. Sol. Diel., 2004, pp. 240-243.
- [29] R. Bodega, P. H. F. Morshuis, U. H. Nilsson, G. Perego, J. J Smit, 'Space charge measurements in dual-dielectric cables', Proc. Nord. Ins. Symp, 2005, pp. 107-110.

- [30] R. Bodega, P. H. F. Morshuis, J. J Smit, 'Space charge measurements on multidielectrics by means of the pulsed electroacoustic method', IEEE Trans.Dielectr. Electr. Insul., Vol. 13, No. 2, 2006, pp.272-281,.
- [31] K. S. Suh, J. H. Nam, J. H. Kim, K. C. Ko, S.O. Han, 'Interfacial properties of XLPE/EPDM laminates', IEEE Trans. Dielectr. Insul., Vol.7, No.2, 2000, pp. 216-221,.
- [32] K. S. Suh, J. Y. Kim, H. S. Noh, C. R. Lee, 'Interfacial charge in polyethylene/ethylene vinylacetate laminates', IEEE Trans. Dielectr. Insul., Vol.3, No.6, 1996, pp. 758-764,.
- [33] [147] M. Uchiumi, T. Tanaka, K. Ueda, M. Nitta, 'Characteristics of space charge in polyethylene/ethylene-propylene-terpolymer laminates', Proc. Int. Symp.Electr. Insul. Mater, 1998, pp. 117-120.
- [34] J. Blitz, Fundamentals of ultrasonics, Chapter 1 and 2, second edition, London butterworths, 1967.
- [35] M. Jeroense, 'Charges and Discharges in HVDC Cables', PhD-thesis Delft University of Technology, Delft University Press, 1997
- [36] J. Beyer, 'Space Charge and Partial Discharge Phenomena in HVDC Devices', PhD-thesis Delft University of Technology, ISBN 90-6734-097-9, 2002.
- [37] G. C. Montanari, C. Laurent, G. Teyssedre, A. Campus and U. H. Nilsson, 'From LDPE to XLPE: Investigating the Change of Electrical Properties', IEEE Trans. Diel. Electr. Insul., Vol. 12, 2005, pp. 438-446.
- [38] G. C. Montanari and D. Fabiani, 'Evaluation of dc Insulation Performance Based on Space-Charge measurements and Accelerated Life Tests', IEEE Trans. Diel. Electr. Insul., Vol. 13, 2006, pp. 903-916,.
- [39] R. Bodega, 'Space Charge Accumulation in Polymeric High Voltage DC Cable Systems', PhD Thesis, Delft University, The Netherlands, 2006, ISBN: 90-8559-228-3.
- [40] CIGRE Joint Task Force 21/15, 'Interfaces in accessories for extruded HV and EHV cables', Electra, N° 203, 2002, pp. 53-59.
- [41] L. A. Dissado and J. C. Fothergill, '*Electrical Degradation and Breakdown in Polymers*', Edited by G. C. Stevens, Peter Perigrinus Ltd., 1992.
- [42] K. C. Kao and W. Hwang, '*Electrical Transport in Solids*', International Series in the Science of the Solid State, Vol. 14, Pergamon Press, 1981.
- [43] S. Le Roy, G. Teyssedre, C. Laurent, G. C. Montanari and F. Palmieri, 'Description of charge transport in polyethylene using a fluid model with a constant mobility: fitting model and experiments', J. Phys. D.: Appl. Phys., Vol. 39, 2006, pp. 1427-1436.
- [44] J. C. Maxwell, 'A treatise on electricity and magnetism', Clarendon, 1881.

- [45] G. C. Montanari and P. H. F. Morshuis, 'Space Charge Phenomenology on Polymeric Insulating Materials', IEEE Trans. Diel. Electr. Insul., Vol. 12, 2005, pp. 754-767.
- [46] S. Delphino, D. Fabiani, G. C. Montanari, C. Laurent, G. Teyssedre, P. H. F. Morshuis, R. Bodega and L. A. Dissado, 'Polymeric HVDC cable design and space charge accumulation. Part 2: insulation interfaces', IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 24, 2008, pp. 14-24.
- [47] G. Chen, 'Interfaces and Space Charge in Polymeric Insulating Materials', Mater. Res. Soc. Symp. Proc., Vol. 889, 2006, Materials Research Society.
- [48] G. Chen, T. Y. G. Tay and A. E. Davies, '*Electrodes and Charge Injection in LDPE*', IEEE Trans. Diel. Electr. Insul., Vol. 8, 2001, pp. 867-873,.
- [49] Y. Li, T. Tanaka, H. Miyata and T. Niwa, 'Observation of Charge Behaviour in Multiple Low-Density Polyethylene', J. Appl. Phys., Vol. 74, 1993, pp. 2725-2730.
- [50] G. C. Montanari, C. Laurent, G. Teyssedre, F. Campus, U. H. Nilsson, P. H. F. Morshuis and L. A. Dissado, 'Investigating Charge Trapping Properties of Combinations of XLPE and Semiconductive materials in Plaques and cable Models', International Symposium on Electrical Insulating Materials, June 5-9, Kitakyushu, Japan, 2005, pp. 99-102.
- [51] R. Bodega, P. H. F. Morshuis and J. J. Smit, 'Space Charge Measurements on Multi-Dielectrics by means of the Pulsed Electroacoustic Method', IEEE Trans. Diel. Electr. Insul., Vol. 13, 2006, pp. 272-281,.
- [52] G. Chen, Y. Tanaka and L. Zhong, 'Effect of Polyethylene Interface on Space Charge Formation', IEEE Trans. Diel. Electr. Insul., Vol. 11, 2004, pp. 113-120.
- J. C. Fothergill, G. C. Montanari, G. C. Stevens, C. Laurent, G. Teyssedre, L. A. Dissado, U.
 H. Nilsson and G. Platbrood, '*Electrical, Microstructural, Physical and Chemical Characterization of HV XLPE Cable Peelings for an Electrical Ageing Diagnostic Data Base'*, IEEE Trans. Diel. Electr. Insul., Vol. 10, 2003, pp. 514-527.
- [54] K. Fukunaga and T. Maneo, 'Measurement of the internal space charge distribution of an anti-electrostatic discharge polymer', IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul., Vol. 2, 1995, pp. 36-39.
- [55] M. Fu, G. Chen, L. A. Dissado and J. C. Fothergill, 'Influence of Thermal Treatment and Residues on Space Charge Accumulation in XLPE fior DC Power Cable Application', IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul., Vol. 14, 2007, pp. 53-64.
- [56] K. Fukunaga, T. Maeno, Y. Hashimoto and K. Suzuki, 'Space Charge Formation at the Interface between a Charge Transport Layer and a Polyester Film', IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul., Vol. 5, 1998,pp. 276-280.
- [57] K. J. Less and E. G. Wilson, 'Intrinsic photoconduction and photoemission in polyethylene', J. Phys. C: Solid State Phys., Vol. 6, 1973, pp. 3110-3120.

- [58] T. P. Nguyen, P. Molinie and P. Destruel, 'Organic and polymer-based light-emitting diodes', in Handbook of Advanced Electronic and Photonic Materials and Devices, Edited by H. S. Nalwa, Academic Press, London, 2001.
- [59] D. Fabiani, G. C. Montanari, C. Laurent, G. Teyssedre, P. H. F. Morshuis, R. Bodega, L. A. Dissado, A. Campus and U. H. Nilsson, '*Polymeric HVDC cable design and space charge accumulation. Part 1 : insulation/semicon interface'*, IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 23, 2007, pp. 11-19.
- [60] L. A. Dissado, V.Griseri, W. Peasgood, E. S. Cooper, K. Fukunaga and J.C.Fothergill, 'Decay of Space Charge in a Glassy Epoxy Resin Following Voltage Removal', IEEE Trans. Diel. Electr. Insul., Vol. 13, 2006, pp. 903-916.
- [61] L. A. Dissado, O. Paris, T. Ditchi, C. Alquie and J. Lewiner, 'Space Charge Injection and Extraction in High Divergent Fields', Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Austin, Texas, 1999, pp. 23-26.
- [62] P. K. Watson, '*The Transport and Trapping of Electrons in Polymers*', IEEE Trans. Diel. Electr. Insul., Vol. 2, 1995, pp. 915-924.
- [63] G. Teyssedre, C. Laurent, A. Aslanides, N. Quirke, L. A. Dissado, G. C. Montanari, A. Campus and L. Martinotto, 'Deep Trapping Centers in Cross-linked Polyethylene investigated by Molecular Modeling and Luminescence Techniques', IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul, Vol. 8, 2001, pp. 744-752.
- [64] J. T. Holbøll, M. Henriksen, J. Hjerrild, 'Space charge build-up in XLPE-cable with temperature gradient', Proc. IEEE Conf. Electr. Insul. Diel. Phen., 2000, pp. 157–160.
- [65] F. Boufayed, S. Leroy, G. Teyssedre, C. Laurent, P. Segur, E. Cooper, L. A. Dissado, G. C. Montanari, 'Numerical resolution of charge transport in crosslinked polyethylene by means of a bipolar model with a distribution of traps', Proc. IEEE Int. Conf. Sol. Diel., 2004, pp. 562-566.
- [66] F.Rogti A. Mekhaldi, C.Laurent 'Space charge behaviour at physical interfaces in cross-linked polyethylene under DC field' IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation Vol. 15, No. 5; October 2008 1070-9878/08/\$25.00 © 2008 IEEE, pp.1478-1485.
- [67] F.Rogti A. Mekhaldi, C.Laurent 'Space charge behavior at physical interfaces in cross-linked polyethylene under DC field' 2008 Annual Report Conference on Electrical Insulation Dielectric Phenomena, 978-1-4244-2549-5/\$25.00 © 2008 IEEE.
- [68] F.Rogti A. Mekhaldi, C.Laurent 'Effect of electrodes on space charge in cross-linked polyethylene under DC field' ICEEE 2nd International Conference on Electrical and Electronics Engineering 21-23 April 2008, , Laghouat , Algeria.
- [69] F. Boufayed, S. Leroy, G. Teyssedre, C. Laurent, P. Segur, L. A. Dissado, G. C.Montanari, 'Simulation of bipolar charge transport in polyethylene featuring trapping and hopping conduction through an exponential distribution of traps', Proc. IEEE Int. Symp. Electr. Insul. Mat., 2005, pp. 340-343.

- [70] S. Le Roy, F. Boufayed, G. Teyssèdre, C. Laurent, P. Ségur, R. Bodega, P.H.F. Morshuis, G.C. Montanari, L.A. Dissado, 'Computer simulation of space charge distribution in an XLPE-EPR sandwich', Proc. IEEE Int. Conf. Electr. Insul. Diel. Phen., 2005, pp. 661-664,.
- [71] C. N. Rasmussen, J. T. Holboll, M. Henriksen, 'Dynamic space charge behaviour in polymeric DC cables', Proc. IEEE Int. Symp. Electrets, 2002, pp. 23-36.
- [72] H. Lau, 'Aufbau der Raumladung in einem betriebswarmen Gleichspannungskabel', Archiv für Elektrotechnik 53 265, 1970.
- [73] I. W. McAllister, G. C. Crichton, A. Pedersen, 'Charge accumulation in dc cables: a macroscopic approach', Proc. IEEE Int. Symp. Electr. Insul., 1994, pp. 212-216.
- [74] I. W. McAllister, G. C. Crichton, A. Pedersen, 'Space charge fields in dc cables', Proc. IEEE Int. Symp. Electr. Insul., 1996, pp. 661-665.
- [75] B. Aladenize, R. Coelho, F. Guillaumond, P. Mirebeau, 'On the intrinsic space charge in a dc power cable', Jour. Electrost., Vol. 39, 1997, pp. 235-251.
- [76] R. Coelho, B. Aladenize, P.Mirebeau, 'On the intrinsic space charge in a dc power cable', Proc. IEEE Conf. Electr. Insul. Diel. Phen., 1996, pp. 278-282.
- [77] R. Coelho, 'Charges in non homogeneous dielectrics', Proc. IEEE Conf. Electr. Insul. Diel. Phen., 1997, pp. 1-10.
- [78] M. Jeroense, 'Charges and Discharges in HVDC Cables', PhD-thesis Delft University of Technology, Delft University Press, 1997.
- [79] M. Jeroense, P. H. F. Morshuis, 'Electric fields in HVDC paper-insulated cables', IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul., Vol. 5 No. 2, 1998, pp. 225-236,.
- [80] K. R. Bambery, R. J. Fleming, 'Activation energies and electron transport in LDPE', Proc. IEEE Conf. Electr. Insul. Diel. Phen., 2003, pp. 28–31.
- [81] K. R. Bambery, R. J. Fleming, 'Space charge profiles in planar LDPE with TiO2 additive and a temperature gradient', Proc. IEEE Conf. Electr. Insul. Diel. Phen., 2001, pp. 36–39.
- [82] J. T. Holbøll, K. R. Bambery, R. J. Fleming, 'Space charge and steady state current in LDPE samples containing a permittivity/conductivity gradient', Proc. IEEE Conf. Electr. Insul. Diel. Phen, , 2000, pp. 381–384.
- [83] S. Boggs, D. H. Damon, J. Hjerrild, J. T. Holbøll, M. Henriksen, 'Effect of insulation properties on field grading of solid dielectric DC cables', IEEE Trans. Pow. Del., Vol. 16, No. 4, 2001, pp. 456-461.
- [84] S. Boggs, 'A rational consideration of space charge', IEEE Electr. Insul. Mag.Vol. 20, No. 4, 2004, pp. 22-27.

- [85] J. Hjerrild, J. Holbøll, M. Henriksen, S. Boggs, 'Effect of semicon-dielectric interface on conductivity and electric field distribution', IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul., Vol. 9, No. 4, 2002, pp. 596-603.
- [86] T. L. Hanley, R. J. Fleming, K. W. Barber, 'A general review of polymeric insulation for use in *HVDC cables*', IEEE Electr. Insul. Magaz., Vol. 19, pp,13-24.
- [87] HVDC project Deliverable 5.1. 'Report on operational, economic, environmental and risk reduction net benefits for the scenarios examined'. Report of the HVDC project "Benefits of HVDC links in the European power electrical system and improve HVDC technology", 2006.
- [88] E. Ildstad, F. Mauseth, G. Balog, 'Space charge and electric field distribution in current loaded polyethylene insulated HVDC cables', Int. Symp. HV Eng, 2003, pp 366 and CD-rom.
- [89] B. Alijagic-Jonuz, P. H. F. Morshuis, J. J. Smit, 'Changing of space charge related material properties due to electrical aging'. Proc. Int. Conf. Prop. App. Diel. Mat., 2003, pp. 904-908.
- [90] K. R. Bambery, R. J. Fleming, J. T. Holboll, 'Space charge profiles in low density polyethylene samples containing a permittivity/conductivity gradient', J. Phys. D Appl. Phys., 34, 2001, pp.3071-3074.
- [91] A. J. Berkhout, 'Applied seismic wave theory Advances in exploration geophysics 1', Elsevier Science Publishers, 1987.
- [92] J. B. Bernstein, 'Improvements to the electrically stimulated acoustic-wave method for analysing bulk space charge', IEEE Trans. Electr. Insul., Vol. 27, 1992, pp. 152 161.
- [93] J. Beyer, P. H. F. Morshuis, 'Conduction current measurements on polycarbonates subjected to electrical and thermal stress', Proc. IEEE Conf. Electr. Insul. Diel. Phenom., 2000, pp. 617 621.