



Mesures et modélisations comportementales de diélectriques β -irradiés

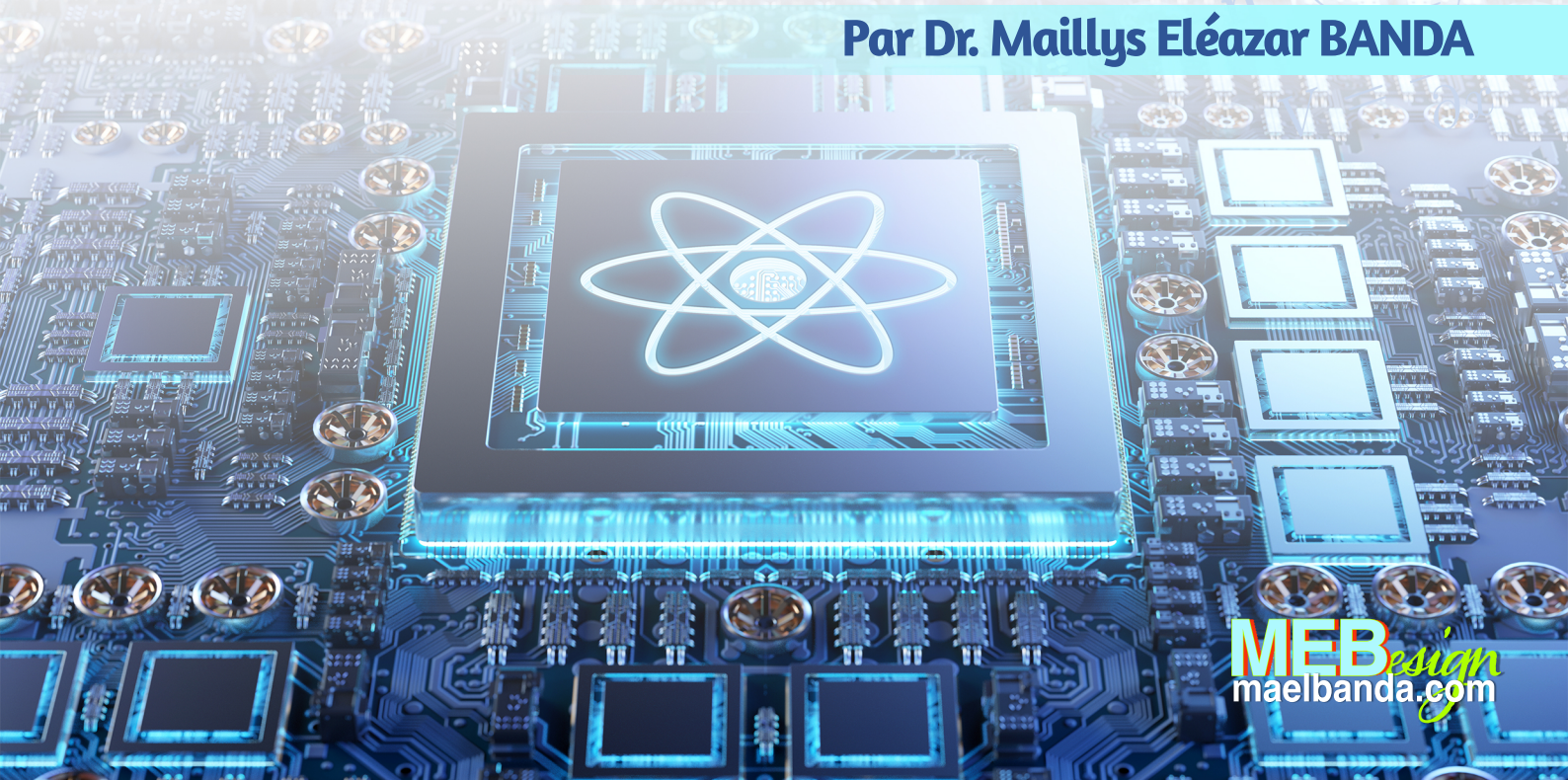
Thèse de Doctorat



UNIVERSITÉ
TOULOUSE III
PAUL SABATIER



Par Dr. Maillys Eléazar BANDA



MEBesign
maelbanda.com



THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par : *l'Université Toulouse 3 Paul Sabatier (UT3 Paul Sabatier)*

Présentée et soutenue le 01/12/2017 par :

Maillys Eléazar BANDA GNAMA MBIMBIANGOYE

Mesure et modélisation comportementales de matériaux diélectriques irradiés par faisceau d'électrons.

JURY

OMAR JBARA	Professeur, Université de Reims	Rapporteur
GILLES DAMAMME	Ing. Commissariat Energie Atomique, CEA-Grammat	Rapporteur
THIERRY PAILLAT	Professeur, Université de Poitiers Professeur,	Examineur
DAVID MALEC	Professeur, UT3-Paul Sabatier	Examineur
GILBERT TEYSSÈDRE	Directeur de Recherche, CNRS	Directeur de thèse
VIRGINIE GRISERI	MCF, UT3-Paul Sabatier	Co-encadrante
SÉVERINE LEROY	Chargée de Recherche, CNRS	Invité

École doctorale et spécialité :

GEET : Génie Electrique/Physique des Matériaux

Unité de Recherche :

Laboratoire Plasma et Conversion d'Énergie -LAPLACE-(UMR 5213)

Directeur(s) de Thèse :

Gilbert TEYSSÈDRE, Séverine LE ROY et Virginie GRISERI

Rapporteurs :

Omar JBARA et Gilles DAMAMME

**À toutes les personnes victimes d'injustices,
quelle que soit la nature de celles-ci, je dédie ce travail.**

Malgré toutes ses insuffisances, ce travail n'aurait pu aboutir sans l'encadrement de qualité qu'il a bénéficié, c'est indéniablement le fruit d'une collaboration scientifique que je salue de gratitude. Que mes encadrants trouvent donc ici l'expression de ma profonde reconnaissance pour la direction de ces travaux de recherche.

J'ai une pensée particulière pour Séverine auprès de qui j'ai amélioré mon attrait pour la modélisation.

À mes deux rapporteurs, j'adresse de même mes remerciements pour avoir évalué ce travail et, par leurs pertinents apports, contribué à son amélioration. Ces remerciements vont aussi à l'endroit de mes deux examinateurs dont la participation à ce jury de thèse m'a particulièrement honoré.

De par son accueil et les conditions de travail qui m'y ont été offertes, le LAPLACE a fortement enrichi cette expérience de recherche, tant intellectuellement qu'humainement. C'est la raison pour laquelle, je reste reconnaissant à de nombreuses composantes et personnes de ce laboratoire d'accueil. Qu'il s'agisse des membres de l'équipe DSF, des collègues enseignant(e)s de la FSI, du personnels d'aide à la recherche que des doctorant(e)s avec lesquels j'ai tissé des liens indéfectibles, je leur exprime mon amicale gratitude ;

Enfin, à tous ceux qui de près ou de loin accompagnent et inspirent ma détermination à réussir, malgré tout, je réitère ma reconnaissance.

**Malumbi ghuli Nzembi wa ba nkare ba besu, muvengui a motchi mu makèssê.
L'bwe, buyédi na missangue miendi ghuli mèn mu'bu**

Table des matières

Table des matières	i
Nomenclature.....	iv
Introduction générale.....	1
Chapitre 1 De la génération au transport de charges dans le PEbd irradié	3
1.1. Structure et propriétés des polymères	4
1.1.1. Structure chimique	4
1.1.2. Propriétés physico-chimiques des polymères.....	6
1.1.3. Propriétés électriques.....	6
1.2. Irradiation électronique des diélectriques polymères.....	7
1.2.1. Phénomène radiatif.....	7
1.2.2. Interaction des rayonnements ionisants avec la matière.....	9
1.2.3. Dose ionisante et pouvoir d'arrêt.....	11
1.3. Comportement du PEbd sous irradiation	12
1.3.1. Synthèse des études expérimentales sur les diélectriques irradiés	12
1.3.2. Intérêt de l'irradiation du PEbd.....	15
1.3.3. Irradiation et vieillissement du PEbd.....	15
1.3.4. Facteurs influençant le comportement du PEbd irradié.....	16
1.4. Mécanismes de génération et de transport de charges dans le PEbd	17
1.4.1. Charge d'espace et conductivité dans les diélectriques solides	17
1.4.2. Diagramme de bandes et niveaux d'énergie dans le PEbd.....	19
1.4.3. Mécanismes de génération à l'interface électrode-diélectrique.....	20
1.4.4. Mécanismes de transport dans le volume du diélectrique.....	23
1.4.5. Courant transitoire sous polarisation.....	26
1.5. Modélisation de la génération et du transport de charges dans le PEbd.....	27
1.5.1. Caractéristiques des modèles de transport des isolants polymères.....	28
1.5.2. Formulation mathématique.....	30
1.6. Synthèse.....	33
1.7. Références bibliographiques du chapitre 1.....	34
Chapitre 2 Matériau d'étude et méthodologie expérimentale	39
2.1. Matériau d'étude.....	40
2.1.1. Choix du PEbd sans additif.....	40
2.1.2. Mise en œuvre des substrats par thermomoulage.....	40
2.1.3. Technique de métallisation Au.....	42

2.2.	Irradiation sous faisceau d'électrons.....	42
2.2.1.	Banc expérimental d'irradiation.....	42
2.2.2.	Canon à électrons.....	43
2.2.3.	Dispositifs de mesures in-situ.....	44
2.3.	Techniques de caractérisation électriques.....	46
2.3.1.	Mesures de charges d'espace.....	46
2.3.2.	Principe de la méthode Electro-Acoustique Pulsée (PEA).....	46
2.3.3.	Dispositif PEA 'classique' ex-situ.....	50
2.3.4.	Dispositif PEA in-situ sous irradiation.....	52
2.3.5.	Mesure de courant et d'Electroluminescence.....	53
2.4.	Techniques de caractérisation physico-chimiques.....	54
2.4.1.	Photoluminescence.....	55
2.4.2.	Spectroscopie Infra-Rouge à Transformée de Fourier (FTIR).....	56
2.4.3.	Analyse Enthalpique Différentielle (DSC).....	59
2.5.	Synthèse.....	61
2.6.	Références bibliographiques du chapitre 2.....	62
Chapitre 3	Caractérisation du PEbd irradié par faisceau d'électrons.....	64
3.1.	Caractérisations électriques du PEbd irradié par faisceau d'électrons.....	65
3.1.1.	Comportement du PEbd durant l'irradiation.....	65
3.1.2.	Comportement du PEbd irradié sous polarisation continue.....	73
3.1.3.	Courant et électroluminescence.....	81
3.2.	Caractérisations physico-chimiques du PEbd irradié par faisceau d'électrons.....	85
3.2.1.	Mesure de photoluminescence (PL).....	85
3.2.2.	Spectroscopie Infrarouge à transformée de Fourier (FTIR).....	87
3.2.3.	Analyse Enthalpique différentielle (DSC).....	88
3.3.	Synthèse sur la caractérisation du PEbd irradié par faisceau d'électrons.....	89
3.4.	Références bibliographique du chapitre 3.....	92
Chapitre 4	Modélisation de la génération et du transport de charges dans le PEbd irradié.....	94
4.1.	Résolution du modèle.....	95
4.1.1.	Hypothèses physiques du modèle.....	95
4.1.2.	Méthode des éléments finis.....	96
4.1.3.	Implémentation du modèle sous CM.....	102
4.1.4.	Solveurs.....	106
4.1.5.	Post-traitement et résultats.....	108
4.2.	Analyse de la sensibilité des paramètres du modèle.....	113
4.2.1.	Sensibilité des paramètres d'irradiation.....	113
4.2.2.	Sensibilité des paramètres du transport.....	119
4.2.3.	Synthèse.....	123

4.3	Optimisation des paramètres du modèle.....	124
4.3.1	Paramètres constants.....	124
4.3.2	Optimisation de la barrière de hopping.....	125
4.3.3	Barrières d'injection.....	126
4.3.4	Coefficients de piégeage.....	127
4.4	Confrontation du modèle aux mesures expérimentales.....	129
4.4.1	Paramètres optimisés.....	129
4.4.2	Comportement électrique sous irradiation.....	131
4.4.3	Comportement électrique après irradiation.....	133
4.5	Synthèse et pistes d'évolutions du modèle.....	136
4.6	Références bibliographiques du chapitre 4.....	138
Conclusion générale.....		140

Nomenclature

Symbole	Désignation	Valeur	Unité
q	Charge élémentaire	1.6×10^{-19}	[C]
A	Constante de Richardson-Dushman	1.2017×10^6	[A.m ⁻² .K ⁻²]
h	Constante de Plank	6.6261×10^{-34}	[J.s]
k_B	Constante de Boltzmann	1.3806×10^{-23}	[J.K ⁻¹]
ε_0	Permittivité du vide	8.8542×10^{-12}	[F.m ⁻¹]
ε_r	Permittivité relative du diélectrique	2.3 (PEbd)	
$\varepsilon = \varepsilon_0 \varepsilon_r$	Permittivité du matériau		
V	Tension électrique		[V]
E	Champ électrique		[V. m ⁻¹]
T	Température		[K]
G_0	Coefficient de génération de paires électrons/trous		[C.m ³ .s ⁻¹]
μ_k	Mobilité de l'espèce k		[m ² .V ⁻¹ .s ⁻¹]
B_k	Coefficient de piégeage de l'espèce k		[s ⁻¹]
$N_{0,k}$	Densité maximale de pièges de l'espèce k		[C.m ⁻³]
W_k	Barrière d'injection de l'espèce k		[eV]
W_{trk}	Barrière de dépiégeage de l'espèce k		[eV]
$\phi_{a,k}$	Barrière hopping pour l'espèce k		[eV]
S_0	Coefficient de recombinaison entre électrons piégés/trous piégés		[m ³ .C ⁻¹ .s ⁻¹]
S_1	Coefficient de recombinaison entre électrons mobiles/trous piégés		[m ³ .C ⁻¹ .s ⁻¹]
S_2	Coefficient de recombinaison entre électrons piégés/trous mobiles		[m ³ .C ⁻¹ .s ⁻¹]

S_3	Coefficient de recombinaison entre électrons mobiles/trous mobiles		$[m^3.C^{-1}.s^{-1}]$
s_k	Terme source de l'espèce k		$[C.m^3.s^{-1}]$
n_k	Densité de charge de l'espèce k		$[C.m^{-3}]$
ρ	Densité nette de charge		$[C.m^{-3}]$
ν	Fréquence de saut	$\frac{k_B T}{h}$	$[s^{-1}]$
λ	Distance inter-piège		$[m]$
Δx	Pas dans l'espace		$[m]$
Δt	Pas dans le temps		$[s]$
J	Densité de courant		$[A.m^{-2}]$
D_k	Coefficient de diffusion d'Einstein pour l'espèce k	$\mu_k \frac{k_B T}{q}$	$[m^2.s^{-1}]$

Introduction générale

Qu'il s'agisse de sa production, de son transport, de sa conversion ou lors de sa consommation terminale, l'énergie électrique transite principalement par des matériaux isolants, supports de son cheminement d'un matériau conducteur à l'autre. Ces matériaux isolants (ou diélectriques) sont dotés, entre autres caractéristiques, d'une conductivité électrique suffisamment faible pour limiter la conduction de charges électriques entre deux zones conductrices d'électricité. En plus de ce rôle d'isolant, ils doivent souvent assurer une tenue mécanique et évacuer, par conduction thermique, la chaleur produite par lesdits conducteurs.

Dans leurs usages courants, les isolants sont aussi bien constitutifs des câbles de transport d'énergie, des circuits de commande et de conversion de puissance, que des composants (micro)électroniques, des machines électriques (transformateurs, alternateurs, machines industrielles...), des systèmes embarqués (revêtement thermique des satellites, accumulateurs...) etc. L'exigence du confinement de ces dispositifs, couplée à leurs impératifs d'utilisation sous des champs électriques de plus en plus importants rendent aujourd'hui complexes la fiabilité de leurs performances sous contraintes environnementales variables (rayonnement, température, humidité, champ électrique...). L'amplitude de certaines de ces contraintes, en plus du temps d'exposition du matériau à celles-ci, peut engendrer une accumulation irréversible de charges électriques en leur sein, favorable à un accroissement local du champ électrique qui peut provoquer le vieillissement prématuré de l'isolant, voire la détérioration de ses propriétés fondamentales, dont sa rigidité électrique. De ce fait, la compréhension des mécanismes responsables de la génération et du transport de charges électriques au sein des matériaux diélectriques soumis à diverses contraintes, dont celles radiatives et électriques, se trouve être un enjeu technologique majeur.

Dans le cas des diélectriques organiques solides, l'un des moyens communément utilisé pour étudier les mécanismes de génération et de transport des charges, est la détection de la distribution spatio-temporelle des charges d'espace au sein du matériau, lorsque celui-ci est soumis à une différence de potentiel. Cependant, cette méthode n'offre pas encore toutes les satisfactions pour clairement discriminer les contributions provenant, d'une part, de la génération des charges (par injection aux interfaces électrodes-diélectriques par exemple), et celles dues aux phénomènes de transport au sein du volume du matériau, d'autre part. Alternativement, l'implantation des charges par faisceau d'électrons au sein du diélectrique se trouve être un moyen original de pallier cette insuffisance. A partir d'une énergie de faisceau et d'un flux d'électrons maîtrisés, des charges peuvent être déposées dans le volume du diélectrique à une position et en quantité suffisamment contrôlées. Disposant d'une connaissance théorique et expérimentale de leur densité, il est alors plus aisé, en suivant le comportement de ces charges déposées par irradiation, de mieux dissocier les phénomènes qu'induisent leur présence et ainsi caractériser leur comportement électrique afin d'identifier les principaux mécanismes influençant distinctement leur génération et leur transport sous contrainte électrique continue.

Par ailleurs, l'irradiation revêt aussi un second intérêt dans cette étude. Il n'est pas rare que ces matériaux, conçus pour ne pas conduire de charges ou très faiblement, en soient déjà pourvus dès leur conception, ou se chargent par ionisation au cours de leurs processus de fabrication ou d'utilisation. Ainsi, volontairement ou involontairement, suivant les applications, certains diélectriques fonctionnent dans des environnements radiatifs, soumis directement ou indirectement à des rayonnements électromagnétiques ionisants ou non-ionisants. C'est par exemple le cas des diélectriques assurant l'isolation thermoélectrique dans les centrales de production d'électricité

nucléaire (milieu radioactif), ceux fonctionnant sous environnement spatial chargeant (irradiation solaire, cosmique), ou encore, ceux naturellement irradiés (radioactivité naturelle), exposés (irradiation médicale, industries nucléaires, ondes électromagnétiques ambiantes, MEB¹...), ou perturbés (PEM², déchets nucléaires, lignes Hautes-Tensions...) etc.

La motivation majeure de ce travail est de concilier ces deux attraits : l'étude du comportement des charges au sein des diélectriques solides organiques, à travers l'un des plus utilisés d'entre eux, le PolyEthylène basse densité (PEbd), et la prise en compte de leurs utilisations particulières sous environnement radiatif. Ce double intérêt vise ainsi à améliorer la compréhension générale des mécanismes gouvernant la génération et le transport de charges au sein des matériaux diélectriques solides mais surtout de mieux cerner ceux-ci lorsqu'ils sont soumis, en plus des contraintes électriques, à une source d'irradiation électronique continue. Aussi bien à travers une approche expérimentale originale qu'à partir d'un modèle mathématique tentant de reproduire ces comportements expérimentaux, ce travail présente une contribution pour l'amélioration de la compréhension particulière et la prédiction du comportement de la charge d'espace, sous contraintes électriques et radiatives.

En se basant sur le comportement physico-chimique du PEbd en environnement radiatif, nous présenterons, dans le premier chapitre, les phénomènes de génération et de transport de charges généralement identifiés au sein des diélectriques polymères irradiés. Nous nous intéresserons ensuite, dans le deuxième chapitre, aux différentes techniques de caractérisation physico-chimiques et électriques sur lesquels ont reposé toutes les études expérimentales présentées dans ces travaux. Le troisième chapitre exposera ensuite un éventail de résultats issus des caractérisations expérimentales du comportement du polyéthylène sous contrainte électrique continue avec et sans irradiation électronique. Les résultats de ces caractérisations expérimentales serviront comme données d'entrée pour nourrir le modèle numérique développé simultanément sous COMSOL Multiphysics®. Enfin, à travers le dernier chapitre de cette étude, nous déboucherons sur une confrontation des résultats issus des simulations numériques aux mesures expérimentales de charge d'espace et de courant, en vue de cerner les mécanismes responsables du comportement observé sur le PEbd irradié par faisceau d'électrons et polarisé sous champ électrique continue.

¹ Microscopie Electronique à Balayage

² Perturbations ElectroMagnétiques

Chapitre 1

De la génération au transport de charges dans le PEbd irradié

Dans le but d'étudier les mécanismes de génération et de transport de charges électriques au sein du PEbd irradié par faisceau d'électrons, ce premier chapitre abordera d'abord les principales caractéristiques des matériaux polymères, famille de matériaux dont fait partie le polyéthylène, en vue de décrire succinctement leur structure, et donc indirectement celle du PEbd. Prenant appui sur leurs principales propriétés électriques et physico-chimiques, nous exposerons ensuite le comportement de cette famille de matériaux sous contraintes radiatives et électriques. Enfin, en nous basant sur ces informations comportementales, nous présenterons les différents modèles de conduction et les hypothèses physiques qu'implique leur adaptation au PEbd irradié par faisceau d'électrons.

1.1. Structure et propriétés des polymères

Aussi bien à travers des emballages plastiques, des fibres textiles, des objets électroménagers, des produits d'hygiène, de peinture, d'équipements sportifs, de pièces de véhicules (roues, pneus...) ou encore de circuits électroniques, les matériaux polymères, communément appelés «*matières plastiques*» rythment notre consommation vestimentaire, cosmétique, énergétique et même parfois alimentaire.

L'intérêt manifeste de nombreuses études sur les matériaux polymères se justifie donc en partie par leur place dans notre environnement. Certains d'entre eux, en raison de leur faible coût, leur faible densité volumique, leur accessibilité et la diversité de leurs propriétés thermiques, électriques et mécaniques, sont utilisés comme isolants électriques et thermiques dans divers systèmes électriques et électroniques. L'un d'eux, le polyéthylène, est particulièrement omniprésent dans l'isolation et le gainage des câbles électriques et de télécommunication. La stabilité de nombreuses installations électriques, et par conséquent de nombreux dispositifs de conversion et de stockage d'énergie, en est, de fait, tributaire.

Intéressons-nous d'abord à la structuration physico-chimique de ce matériau avant d'envisager son utilisation finale comme diélectrique. Dans la suite de ce travail, nous nous focaliserons par défaut, sauf indication contraire, sur les matériaux polymères organiques utilisés comme diélectriques solides et dont le PEbd sera pris pour modèle d'étude.

1.1.1. Structure chimique

1.1.1.1. Structure moléculaire

Les polymères désignent des macromolécules obtenues à partir d'une répétition (jusqu'à 100 000 fois) d'une unité de molécules fondamentales appelée 'monomère', de masse moléculaire relativement faible. Les polymères sont obtenus grâce à un procédé de polymérisation en chaîne pouvant déboucher sur un homopolymère ou un copolymère. Dans le premier cas, le polymère final est constitué d'une répétition d'un même motif de monomères ; dans le second cas, ces motifs monomères peuvent différer.

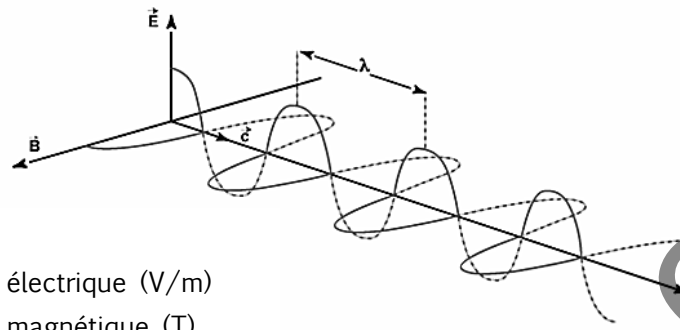
Bien que naturellement présents dans notre environnement (végétaux, animaux), la plupart des polymères sont issus de la synthèse de molécules organiques, constituées principalement de carbone (C) et d'hydrogène (H). Le polyéthylène est l'un d'entre eux, de la famille des polyoléfines. Sa structure chimique est donnée par : $(-\text{CH}_2-\text{CH}_2-)_n$.

Avec n : le degré de polymérisation.

La macromolécule de polyéthylène à la base de notre étude est issue de la polymérisation radicalaire de l'éthylène sous des pressions de 1 à $3,5 \times 10^3$ bars, à des températures de 150 °C à

se déplace dans le vide, cette onde électromagnétique correspond à un rayonnement chromatique caractérisé, comme décrit dans la Figure 1.5, par sa vitesse de propagation dans le vide c , sa fréquence d'émission ν et sa longueur d'onde λ tel que :

$$\lambda = \frac{c}{\nu} \quad (1.1)$$



$\vec{E}$: champ électrique (V/m)
 $\vec{B}$: champ magnétique (T)
 c : célérité de la lumière (m/s)
 λ : longueur d'onde (m)
 ν : fréquence d'onde (Hz)

Figure 1.5 : Description de la propagation d'une onde électromagnétique [5].

La théorie quantique admet la dualité onde-corpuscule du rayonnement électromagnétique (Einstein 1905). De fait, l'énergie est propagée de façon discrète à travers une onde électromagnétique constituée des photons de masse et de charge électrique nulle, dotés de quanta d'énergie E proportionnelle à la fréquence ν de l'onde émise :

$$E = h \nu \quad (1.2)$$

Où $h = 6,626 \times 10^{-34} [J.s]$ est la constante de Planck.

Des particules chargées, de masse (m) non nulle au repos et animées d'un mouvement cinétique de vitesse (v) inférieure à la célérité de la lumière dans le vide, engendrent un rayonnement particulier. Il peut s'agir aussi bien d'un faisceau d'électrons, de protons ou de neutrons. L'énergie E liée à leur mouvement depuis le repos vaut :

$$E = \frac{1}{2} m v^2 \quad (1.3)$$

Induisant de même une longueur d'onde caractéristique [6] :

$$\lambda = \frac{h}{mv} \quad (1.4)$$

Partant des équations (1.2) et (1.3), l'énergie transportée par un rayonnement sera d'autant plus importante que sa fréquence ou sa vitesse le sera. Lorsque cette énergie est suffisante pour éjecter un électron d'une couche atomique cible, on parle de rayonnement ionisant. En pratique, les ondes radioélectriques, Infra-rouges (IR), visibles et Ultra-Violets (UV) sont considérées comme non-ionisantes car insuffisamment énergétiques pour perturber la stabilité atomique de la matière. En revanche, les rayonnements X, gamma (γ) et particulaires sont à même d'impacter l'équilibre atomique. La Figure 1.6 donne un aperçu des différentes caractéristiques du rayonnement électromagnétique en fonction de la fréquence et de la longueur d'onde d'émission.

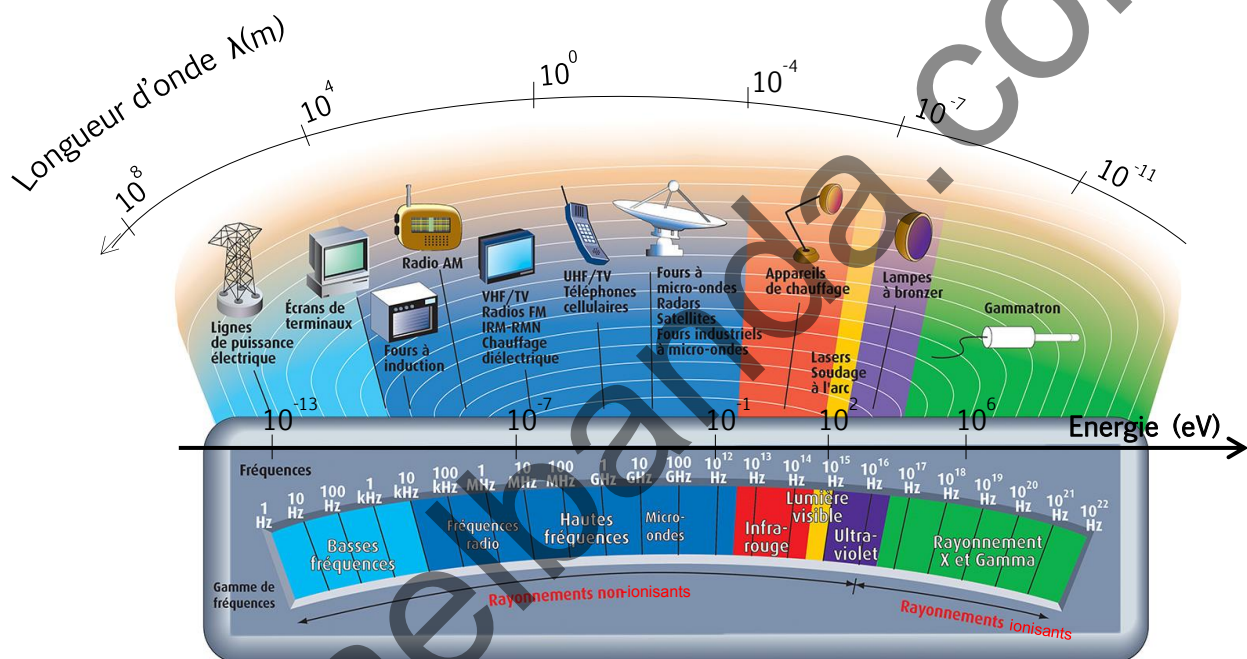


Figure 1.6 : Spectre électromagnétique (© INRS).

Pour notre part, notre travail ayant porté sur l'irradiation par faisceau d'électrons, nous nous intéressons dès lors au rayonnement ionisant ainsi qu'aux effets de son interaction avec la matière.

1.2.2. Interaction des rayonnements ionisants avec la matière.

Lorsqu'un rayonnement ionisant (électrons, X ou γ) pénètre un milieu matériel, il interagit avec les électrons des atomes ou molécules dudit milieu et, quand l'énergie d'ionisation est suffisamment importante, directement avec les protons et neutrons du noyau atomique. Une part suffisante de cette énergie des particules incidentes est cédée à la matière en moins de 10^{-15} s. Les molécules ou atomes impactés sont excités et les électrons des couches orbitales superficielles sont éjectés. Lorsque l'énergie fournie par le rayonnement est totalement transférée à l'électron éjecté, celui-ci peut à son tour la transférer à d'autres électrons et en éjecter d'autres, appelés électrons secondaires. Cette réaction va se répéter jusqu'à ce que l'énergie du dernier électron impacté soit

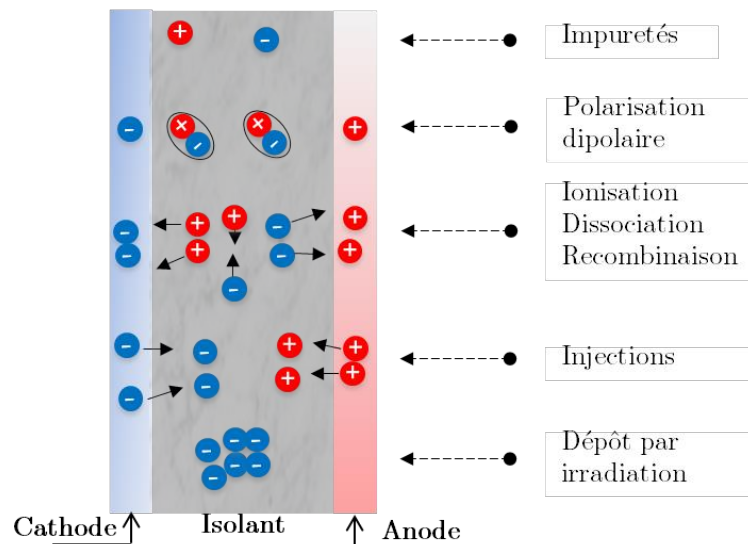


Figure 1.9 : Description des différents processus de création de charges d'espace.

Les charges d'espace ont pour principal effet d'affecter la distribution interne du champ électrique [63]. Comme illustré dans la Figure 1.10, lorsqu'aucune tension électrique n'est préalablement appliquée aux interfaces d'un diélectrique peuplé de charges d'espace de densité nette ρ , un champ électrique interne $E(z)$, dû à la présence de ces charges d'espace, est induit dans le matériau suivant l'équation de Poisson :

$$\nabla E = \frac{\rho(z)}{\epsilon} \quad (1.9)$$

ϵ étant la permittivité diélectrique du milieu et z sa profondeur.

Lorsqu'un champ électrique externe est ensuite appliqué au diélectrique chargé (via deux électrodes planes mises sous tension continue), le champ électrique interne du matériau adopte deux comportements distincts, dépendant du signe de la tension appliquée. La présence d'homocharges¹ à l'interface électrode-isolant accroît significativement le champ électrique interne du diélectrique alors que son champ interfacial tend à s'affaiblir. En reproduisant l'expérience inverse avec des hétérocharges², on observe un comportement symétrique entre champ volumique et interfacial : le champ électrique interfacial augmente alors que celui au sein du volume diminue. Ces deux comportements sont mis en œuvre dans le cas des phénomènes d'injection de charges aux électrodes et lors des phénomènes d'accumulation de charges internes migrantes aux interfaces sous l'action du champ électrique.

¹ Charges de polarité identique à celle de l'électrode en contact.

² Charges de polarité opposée à celle de l'électrode en contact.

1.5.1. Caractéristiques des modèles de transport des isolants polymères

La simulation du comportement expérimental du PEbd irradié n'étant qu'une particularité d'un problème plus global lié à la modélisation des phénomènes de transport de charges au sein de diélectriques polymères, il revient à juste titre de reconsidérer notre étude numérique en regard des évolutions progressives discutées ces dernières décennies.

1.5.1.1. Les considérations physiques des modèles usuels

La modélisation du transport de charges dans les isolants solides s'appuie sur les résultats expérimentaux obtenus au fur et à mesure du développement des outils de caractérisation électrique des diélectriques solides, ainsi que nous le rapportons plus haut dans la section 1.3.1.

Basés sur les avancées liées au transport de charges dans les diélectriques, des modèles analytiques [74, 75] et numérique [21, 76] ont émergé au cours des décennies précédentes en recherchant les uns macroscopiquement, les autres microscopiquement, à mieux élucider les principaux mécanismes gouvernant la conduction des charge dans les matériaux diélectriques. Partant de ces évolutions progressives, Alison et Hill [77] publient un modèle plus avancé tentant de reproduire nombre d'observations expérimentales réalisées au sein du polyéthylène réticulé (XLPE). Ce modèle, reproduit dans la Figure 1.15, considère une conduction supportée par des charges de signes opposés pouvant être libres ou piégées : les électrons et les trous. Les porteurs libres peuvent se mouvoir dans la bande de conduction (électrons) et de valence (trous) à l'aide d'une mobilité effective constante avec possibilité de se piéger dans un niveau d'énergie unique et localisé dans la bande interdite du diélectrique; cette approche initiale ne prend pas encore en compte le dépiégeage des porteurs. La génération des charges est assurée par l'injection à travers les électrodes en y imposant une densité de charges initiale. Les coefficients de recombinaison (S_i) entre charges mobiles et piégées ainsi que ceux définissant le piégeage des porteurs mobiles ($B_{e,h}$) sont déduits à partir de mesures expérimentales.

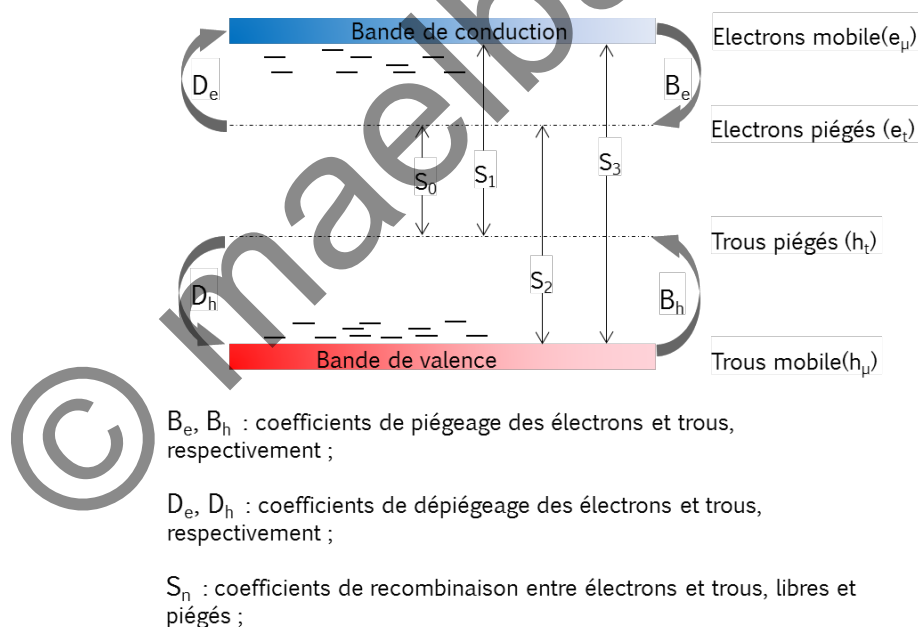


Figure 1.15 : Description du modèle de conduction et de piégeage au sein d'un isolant solide.

Dans la même année, le modèle proposé par Fukuma et al [78, 79] considère aussi un seul niveau de piège mais peu profond et en quantité limitée. Il n'inclut pas l'extraction de charges aux électrodes et considère une génération par injection de type Schottky. L'innovation avec le modèle

$$s_{h\mu}(x, t) = \left\{ \begin{array}{l} \underbrace{G(x)}_{\text{génération des paires}} - \underbrace{B_h \cdot n_{h\mu} \left(1 - \frac{n_{ht}}{N_{0.ht}}\right)}_{\text{piégeage}} \\ + \underbrace{n_{ht} \cdot \nu \exp\left(-\frac{Wtr_h}{k_B T}\right)}_{\text{dépiégeage}} - \underbrace{S_2 \cdot n_{et} \cdot n_{h\mu} - S_3 \cdot n_{e\mu} \cdot n_{h\mu}}_{\text{recombinaison}} \end{array} \right. \quad (1.44)$$

- Terme source pour les trous piégés :

$$s_{ht}(x, t) = \left\{ \begin{array}{l} \underbrace{B_h \cdot n_{h\mu} \left(1 - \frac{n_{ht}}{N_{0.ht}}\right)}_{\text{piégeage}} \\ - \underbrace{n_{ht} \cdot \nu \exp\left(-\frac{Wtr_h}{k_B T}\right)}_{\text{dépiégeage}} - \underbrace{S_0 \cdot n_{et} \cdot n_{ht} - S_1 \cdot n_{e\mu} \cdot n_{ht}}_{\text{recombinaison}} \end{array} \right. \quad (1.45)$$

Avec, pour tous les termes sources :

- Wtr_e et Wtr_h : les hauteurs de barrière de dépiégeage des électrons et trous piégés, respectivement ;
- $\nu = k_B T / h$: la fréquence de dépiégeage ;
- $N_{0.et}$ et $N_{0.ht}$: la densité maximale des pièges profonds des électrons et trous, respectivement ;
- $G(x) = G_0 \cdot D(x)$, et G_0 : le coefficient de génération de paires électrons/trous, $D(x)$ la dose d'irradiation définie par l'équation (1.5).

1.6. Synthèse

Les bases conceptuelles sur lesquelles s'appuieront les résultats de ce travail viennent ainsi de couvrir ce premier chapitre. L'observation de la structure chimique et la mise en exergue des propriétés fondamentales du PEbd, par l'entremise de la famille des matériaux polymères, nous a permis de positionner le comportement physico-chimique et électrique de ce matériau en regard des attentes expérimentale et numérique que nourrit notre étude. La prise en compte de la modification de ce comportement sous rayonnement électronique et la mise en lumière des facteurs qui l'influencent nous prédispose à aborder la particularité de leur étude sous irradiation par faisceau d'électrons. En vue de cerner les mécanismes de conduction se produisant au sein du PEbd irradié, nous avons présenté les principaux modèles théoriques sur lesquels se base notre étude en couvrant les hypothèses physiques les plus adaptées à notre contexte de modélisation numérique des phénomènes de génération et transport de charges dans le PEbd. Nous disposons ainsi du set complet des équations qui régiront le transport des charges dans le PEbd irradié par faisceau d'électrons. Dans le quatrième chapitre, nous détaillerons leur résolution en les associant aux conditions aux limites et initiales que nous définirons en concordance avec les résultats expérimentaux discutés au chapitre 3.

1.7. Références bibliographiques du chapitre 1

- [1] D. Rémi et B. Lestriez, Introduction aux matériaux polymères, 2nd Edition, Lavoisier TEC&DOC, ISBN 2743020288, 2016.
- [2] J.-M. Bureau, «Propriétés diélectriques des polymères,» *Technique de l'ingénieur, Réf. : E1850 v4*, 2016.
- [3] A. M. Boudet, Voyage au cœur de la matière plastique: les microstructures des polymères, Editions CNRS, ISBN : 9782271061607, 2003.
- [4] J. G. Drobny, Polymers for electricity and electronics : materials, properties, and applications, John Wiley & Sons, ISBN 9780470455531, 2012.
- [5] F. Bonn et G. Rochon, Précis de Télédétection, Volume 1 : Principes et méthodes, Edicef, ISBN : 2841295605, 1992.
- [6] L. V. Broglie, «Ondes et quanta,» *CR Acad. Sci. Paris*, vol. 177, p. 507, 1923.
- [7] J. E. Turner, Atoms, radiation, and radiation protection, 3rd edition, Wiley-VCH Verlag GmbH & Co, ISBN : 9783527406067, 2007.
- [8] S. J. J. Thomson et J. A. McClelland, On the Leakage of Electricity Through Dielectrics Traversed by Röntgen Rays, University Press, 1896.
- [9] P. Ferloni, A. Magistris, G. Chiodelli, A. Faucitano et A. Buttafava, «Effects of gamma-radiation on the polymer electrolyte P (EO) 8-LiClO₄,» *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part C. Radiation Physics and Chemistry*, vol. 40, pp. 365-367, 1992.
- [10] E. Suljovrujić, D. Kostoski, Z. Kačarević-Popović et J. Dojčilović, «Effect of gamma irradiation on the dielectric relaxation of uniaxially oriented low density polyethylene,» *Polymer International*, vol. 48(12), pp. 1193-1196, 1999.
- [11] G. Chen, H. M. Banford et A. E. Davies, «Space charge formation in gamma-irradiated low density polyethylene,» *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 5, pp. 51-57, 1998.
- [12] U. A. Sevil, O. Güven, A. Kovacs et I. Slezsak, «Gamma and electron dose response of the electrical conductivity of polyaniline based polymer composites,» *Radiation Physics and Chemistry*, vol. 67, pp. 575-580, 2003.
- [13] B. Gross, J. A. Giacometti et G. F. L. Ferreira, «Charge storage and transport in electron-irradiated and corona-charged dielectrics,» *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 28, pp. 4513-4522, 1981.
- [14] V. I. Arkhipov, A. I. Rudenko et G. M. Sessler, «Space-charge distribution in electron-beam charged dielectrics,» *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 24, pp. 731-737, 1991.
- [15] K. Labonte, «Radiation-induced charge transport in polymer electrets,» *Proc. IEEE First International Conference on Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics*, pp. 119-123, 1983.
- [16] G. M. Sessler et G. M. Yang, «Charge dynamics in electron-irradiated polymers,» *Brazilian Journal of Physics*, vol. 29, pp. 233-240, 1999.
- [17] B. Gross, «Irradiation effects in Plexiglas,» *Journal of Polymer Science*, vol. 27, pp. 135-143, 1958.
- [18] K. Kubo, «Dielectric Breakdown in LiF Crystals Bombarded by Electrons,» *Journal of Applied Physics*, vol. 37, pp. 4722-4728, 1966.
- [19] B. Gross, Electrets-Chap.4 : Radiation-induced charge storage and polarization effects, Springer, ISBN : 9783540173359, pp. 217-284, 1987.
- [20] B. Gross, G. M. Sessler et J. E. West, «Charge dynamics for electron-irradiated polymer-foil electrets,» *Journal of Applied Physics*, vol. 45, pp. 2841-2851, 1974.
- [21] L. Nunes de Oliveira et B. Gross, «Space-charge-limited currents in electron-irradiated dielectrics,» *Journal of Applied Physics*, vol. 46, pp. 3132-3138, 1975.
- [22] S. Matsuoka, H. Sunaga, R. Tanaka, M. Hagiwara et K. Araki, «Accumulated charge profile in

Chapitre 2

Matériau d'étude et méthodologie expérimentale

© maelbanda.com

Le principe de fonctionnement d'un canon à électrons thermoïonique est illustré en Figure 2.6. Le filament de tungstène est préalablement chauffé en étant traversé par un courant compris entre 0 et 3 A (limité à 1,8 A dans cette étude). Des électrons sont ensuite arrachés au métal et précipités dans toutes les directions spatiales. Une électrode cylindrique (Wehnelt) polarisée négativement force ensuite la convergence des particules chargées dans l'axe du faisceau au point dit de 'cross-over'. Le champ électrique généré en dessous de ce point de convergence assure l'accélération des particules chargées vers la cible. A des fins de variation du diamètre de faisceau incident, une lentille électromagnétique est disposée au pied du faisceau pour réguler le flux des électrons. Pour prévenir des risques liés aux rayonnements X lors du contact entre un électron et une portion métallique de l'enceinte, un épais blindage de plomb (5 à 8 cm) recouvre le canon à électrons.

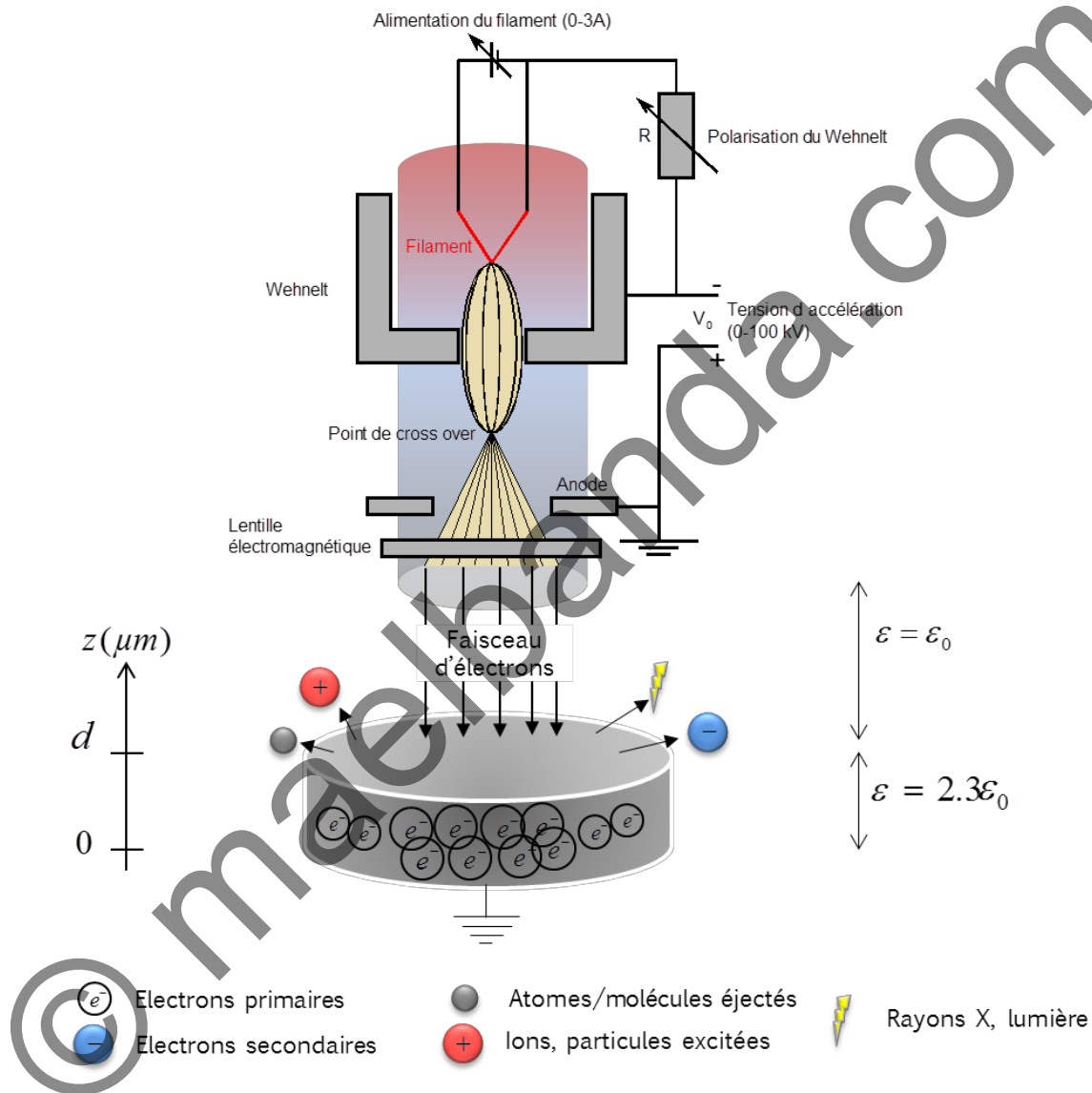


Figure 2.6 : Schématisation du principe d'opération du canon à électrons thermoïonique.

2.2.3. Dispositifs de mesures in-situ

L'intérêt majeur de l'enceinte Matspace est de pouvoir y irradier et caractériser des matériaux diélectriques. Divers dispositifs de mesures y sont-ils implantés (Figure 2.5b) à des fins de mesures électriques in-situ sur des échantillons irradiés. Parmi ceux utilisés dans notre étude, figurent :

- Le capteur de courant :

Par effet coulombien, l'application de la tension d'excitation sur l'échantillon engendre un mouvement transitoire des charges autour de leur position d'équilibre x . Des ondes de pression élémentaires $\Delta p(x, t)$ se propagent alors dans le matériau et parviennent jusqu'au transducteur ; d'abord à la vitesse du son dans le PEbd (v_p) puis à celle du son dans l'électrode de détection (v_a). Notons l_1 et l_2 les épaisseurs respectives de l'électrode de détection et du piézo-électrique.

Chaque plan de charge ρ , de surface S subit une force transitoire $f_\Delta(x, t)$ sous l'action du champ électrique $\Delta E(t)$ appliqué par ces impulsions :

$$f_\Delta(x, t) = \rho(x) \cdot \Delta x \cdot S \cdot \Delta E(t) \quad (2.4)$$

En faisant l'hypothèse que la propagation de chaque onde de pression élémentaire $\Delta p(x, t)$ se fait sans dissipation ni dispersion dans le milieu matériel, la pression élémentaire résultante s'écrit :

$$\Delta p(x, t) = \frac{f_\Delta(x, t)}{S} = \rho(x) \cdot \Delta x \cdot \Delta E(t) \quad (2.5)$$

Or, la pression perçue par le capteur piézo-électrique prend en compte le temps de parcours de l'onde acoustique aussi bien dans le matériau que dans l'électrode détectrice avant l'atteinte du piézo-électrique. Ce qui correspond à une pression dans les deux milieux traversés par l'onde acoustique exprimée par :

$$\Delta p(x, t) = \rho(x) \cdot \Delta x \cdot \Delta E \left(t - \frac{l_1}{v_a} - \frac{x}{v_p} \right) \quad (2.6)$$

Par sommation, l'ensemble des pressions élémentaires conduisent à l'expression de la pression incidente totale $p(t)$ telle que :

$$p(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \Delta p(x, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \rho(x) \cdot \Delta E \left(t - \frac{l_1}{v_a} - \frac{x}{v_p} \right) \Delta x \quad (2.7)$$

En posant $\tau = \frac{x}{v_p}$ le temps de propagation de l'onde de pression au sein du diélectrique, on peut aussi écrire que :

$$\Delta \tau = \frac{\Delta x}{v_p} \Leftrightarrow \Delta x = \Delta \tau \cdot v_p \quad (2.8)$$

La densité de charge $\rho(x)$ devient :

$$\rho(\tau v_p) = r(\tau) \quad (2.9)$$

En injectant les équations (2.8) et (2.9) dans l'équation (2.7), la pression acoustique totale générée prend la forme d'un produit de convolution :

$$p(t) = v_p \int_{-\infty}^{+\infty} \Delta E \left(t - \frac{l_1}{v_a} - \tau \right) \Delta \tau \cdot r(\tau) \quad (2.10)$$

l'échantillon afin de mesurer le courant extérieur à l'aide d'un électromètre connecté à l'électrode de collection (électrode inférieure). Simultanément, un photomultiplicateur collecte les photons émis par le matériau sous application du champ électrique. Deux types de résultats peuvent ainsi être obtenus : (i) l'électroluminescence (en coups ou coups/s), en fonction du temps, et (ii) le courant de conduction, en fonction du temps. Un exemple illustrant ces deux résultats est montré à la Figure 2.13b, pour le cas d'une application d'un échelon de tension électrique continue.

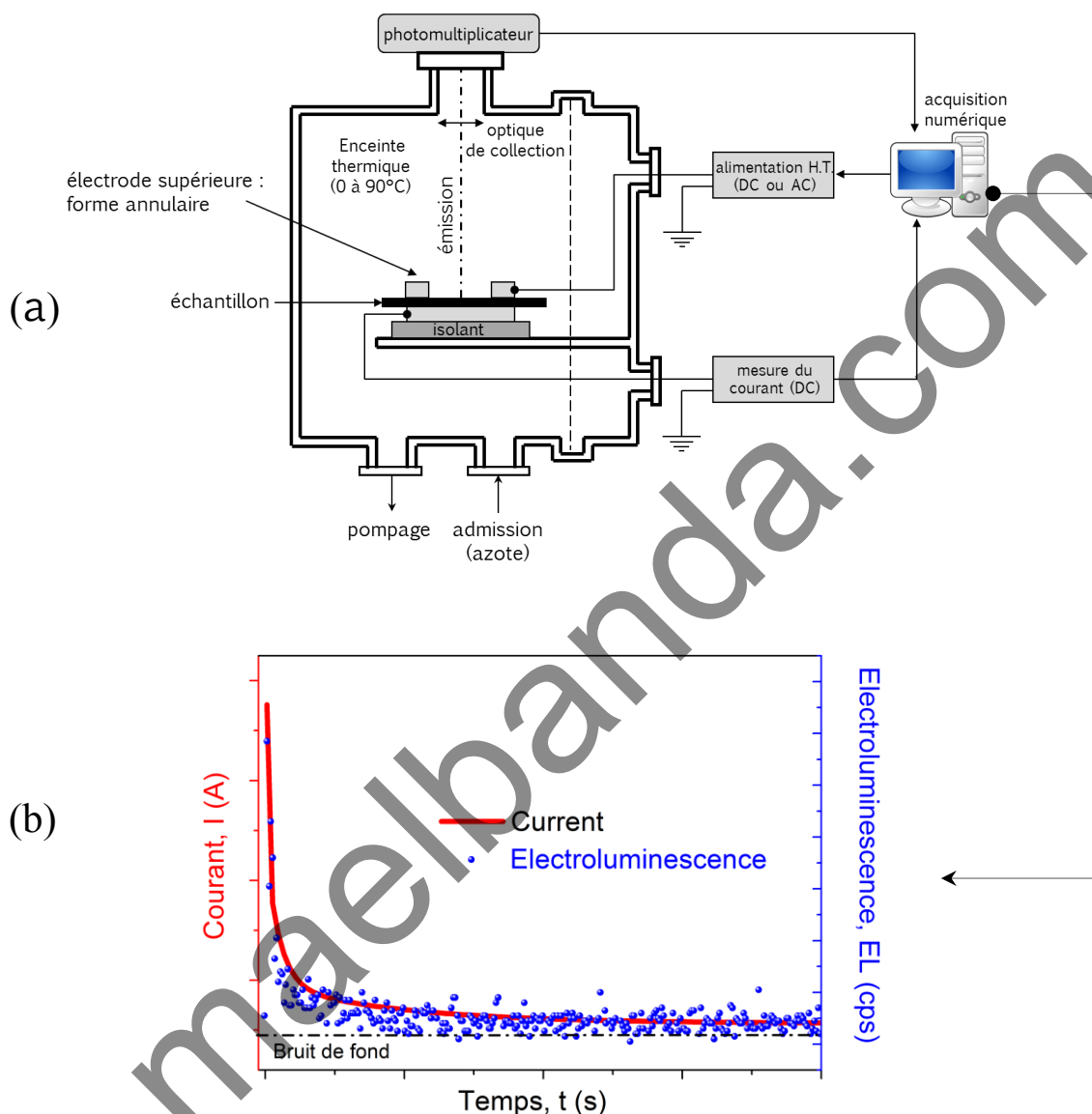


Figure 2.13 : (a) Schématisation du dispositif expérimental des mesures de courant et d'électroluminescence. (b) Résultats types obtenus après une mesure de courant et d'électroluminescence sur un échantillon de PEBd vierge.

2.4. Techniques de caractérisation physico-chimiques

L'analyse du comportement des matériaux diélectriques passe aussi par une caractérisation physique et chimique de ses principales propriétés. C'est particulièrement le cas lorsqu'il s'agit d'appréhender celles-ci après une irradiation qui engendre un dépôt important de charges dans le matériau, susceptibles d'impacter ses propriétés voire sa structure. Les propriétés thermiques,

3.2.2. Spectroscopie Infrarouge à transformée de Fourier (FTIR)

Les mesures FTIR, réalisées dans les conditions expérimentales décrites au chapitre 2, ont porté sur des échantillons de 200 μm irradiés par faisceau d'électrons de 80 keV et 1 nA/cm² pendant 10 minutes continues, puis remis à l'air avant la mesure. Ce choix d'épaisseur s'explique en raison de la sensibilité de la mesure FTIR en transmission dont la calibration est optimisée pour des épaisseurs d'échantillon inférieure à 300 μm . L'échantillon est donc partiellement irradié dans ces conditions. La Figure 3.19 livre une vue globale et zoomée des raies spectrales observées sur les échantillons irradiés et non-irradiés, tous deux caractérisés dans les mêmes conditions de mesure.

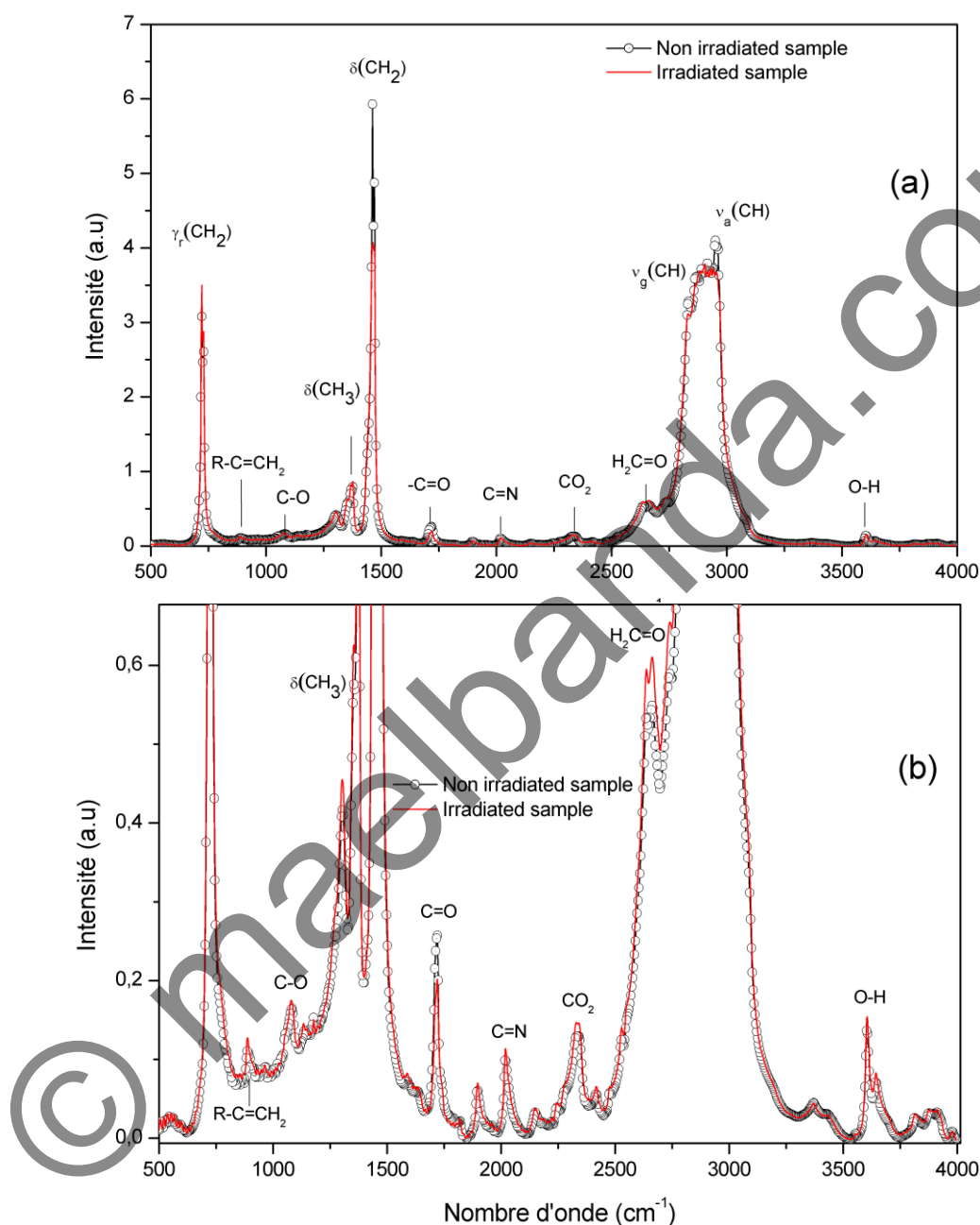


Figure 3.19 : Spectre FTIR en transmission pour des échantillons PEbd 200 μm d'épaisseur, irradié par faisceau d'électrons et non-irradié. (a) Vue complète du spectre de transmission, (b) vue agrandie (zoom).

Les vibrations classiquement observées au sein du PEbd sont détectées. Aucune nouvelle vibration n'apparaît après irradiation. Cependant des variations en intensité des raies spectrales s'observent

Chapitre 4

Modélisation de la génération et du transport de charges dans le PEbd irradié

d'équations (4.13) est aussi non-linéaire. Le vecteur $\mathbf{b}$ équivaut à une fonction des coefficients inconnus v_i . CM offre la possibilité de choisir le type et la forme des fonctions de discrétisation à appliquer sur les dérivées des formulations faibles. Ils sont généralement de type 'Lagrange', 'Hermite', 'Gauss' etc. De même, l'ordre des schémas peut librement être choisi afin de rendre la formulation faible 'la plus proche' possible de l'EDP à résoudre. Cependant, les méthodes de codage de ces schémas numériques sont difficilement accessibles.

4.1.2.3 Discrétisation temporelle

Nous cherchons à présent à discrétiser la partie temporelle de l'équation de continuité (1.34) par la MEF. Comme dans le cas spatial, nous appliquons à cette partie temporelle la forme discrétisée de la formulation faible, suivant la méthode de Galerkin [9], pour chaque fonction test φ_j :

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} \sum_i \left(\int_{\Omega} \psi_i \varphi_j dv \right) \quad (4.14)$$

En raison du nombre important d'itérations à faire dans le cas des problèmes à variation temporelle, l'application de la MEF à la partie temporelle s'avèrerait onéreuse en coût de calcul. Il est courant de limiter ces coûts en appliquant des schémas de discrétisation distincts pour le domaine temporel. CM utilise par exemple la 'méthode des lignes' [10] et peut par exemple approcher la dérivée temporelle de l'équation (4.14) par la méthode des différences finies. Dans sa plus simple formulation, cela reviendrait à :

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} \approx \frac{n_i^{t+\Delta t} - n_i^t}{\Delta t} \quad (4.15)$$

Les exposants (t) renvoient aux coordonnées temporelles et les indices (i) aux coordonnées spatiales.

En remplaçant l'équation (4.15) dans l'équation (4.14) on obtient une discrétisation de la formulation faible du terme temporel :

$$\frac{n_i^{t+\Delta t} - n_i^t}{\Delta t} \sum_i \left(\int_{\Omega} \psi_i \varphi_j dv \right) \quad (4.16)$$

La discrétisation totale de la formulation faible de l'équation de continuité (1.34), conformément à la MEF, équivaut alors à :

$$\begin{aligned} & \frac{n_i^{t+\Delta t} - n_i^t}{\Delta t} \sum_i \left(\int_{\Omega} \psi_i \varphi_j dv \right) \\ & + \\ & \sum_i v_i^{t+\Delta t} \left(\int_{\Omega} w \nabla \psi_i \cdot \nabla \varphi_j dv \right) + \sum_i \left(\int_{\partial\Omega} w V_i^{t+\Delta t} \nabla \psi_i \right) \cdot \mathbf{n} \varphi_j dS = \int_{\Omega} s \sum_i (V_i^{t+\Delta t} \psi_i) \varphi_j dv \end{aligned} \quad (4.17)$$

ayant été annulé à cette électrode pour l'instant, la densité des trous mobiles et piégés est nulle à cette électrode.

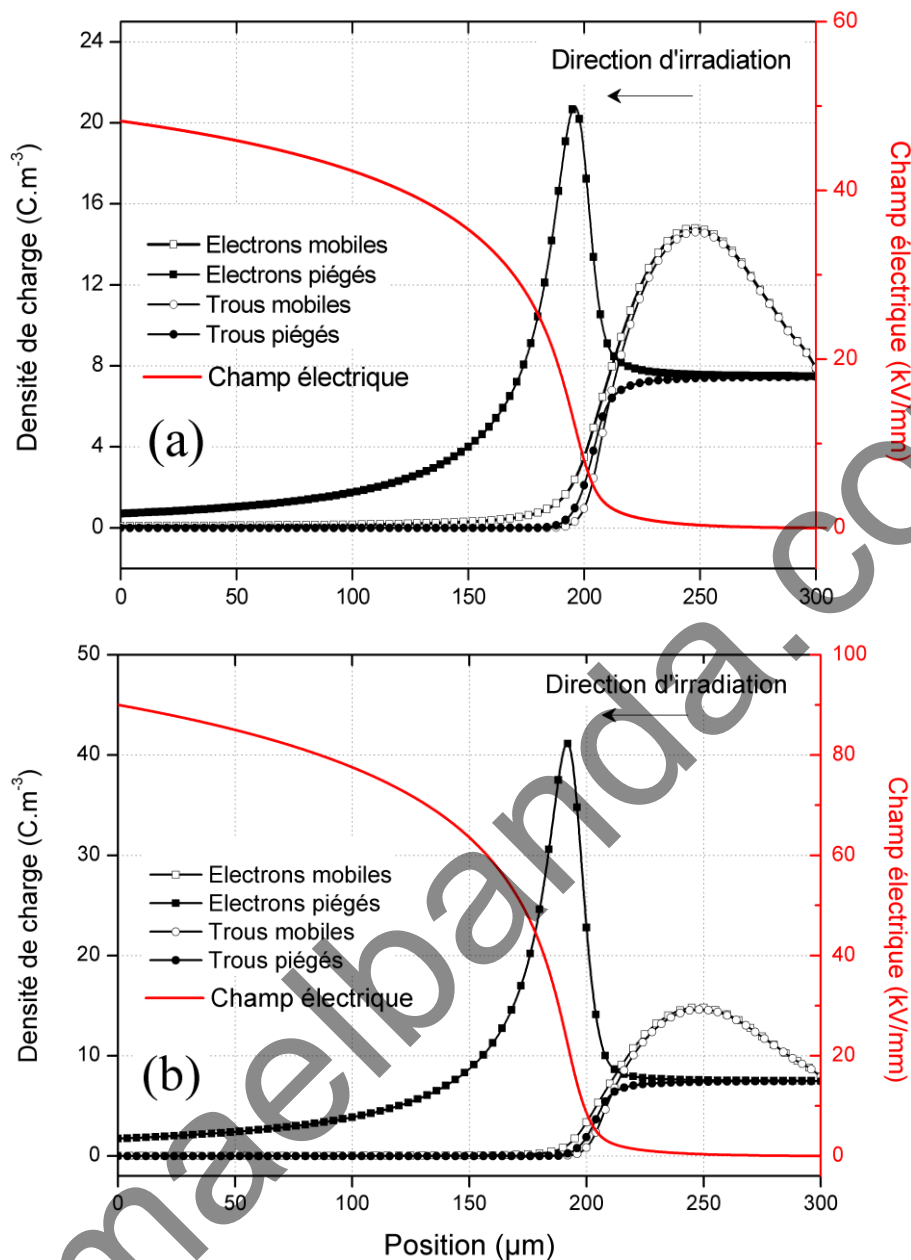


Figure 4.12 : Densité des charges mobiles et piégées simulées, ainsi que les champs électriques associés, en fonction de la position au sein du diélectrique. Simulations réalisées avec $G_0 = 8 \text{ C.m}^{-3}.\text{s}^{-1}$ pour un faisceau d'électrons de 80 keV et 1 nA/cm^2 . Irradiation en configuration 'sans-contact'. Résultats après (a) 2 minutes d'irradiation et après (b) 10 minutes d'irradiation. Paramètres symétriques du Tableau 4.2.

Nous fixons donc pour la suite le coefficient de génération des paires à $8 \text{ C.m}^{-3}.\text{s}^{-1}$. En plus de ce paramètre, les paramètres du transport eux-mêmes (injection, piégeage, dépiégeage, mobilité, recombinaison) influent aussi sur le comportement du modèle. L'analyse de ces paramètres a déjà fait l'objet d'abondants travaux dans le cadre du modèle de transport basé sur une conduction à mobilités et coefficients de recombinaison constants [22, 23]. Pour notre cas où les mobilités des charges et les coefficients de recombinaison sont fonction du champ électrique et de la mobilité,

Ceci reviendrait à simuler un comportement sous irradiation continue à comparer avec des mesures sous irradiation non continue.

- Claquage durant les mesures sous irradiation

Une seconde possibilité mettant à mal la capacité du modèle à coïncider quantitativement avec les mesures sous irradiation serait l'intervention de claquages durant le chargement du matériau ainsi que nous en discutons déjà à la section 3.1.1.2. Cette hypothèse, ainsi que les phénomènes qui l'accompagnent, n'étant pas pris en compte dans le modèle d'irradiation, les résultats de simulation reproduisent donc uniquement le cas d'une irradiation ininterrompue. Toutefois, on peut remarquer qu'aussi bien pour le modèle que pour la mesure, la densité de charge piégée au sein du diélectrique atteint un maximum avec le temps d'irradiation et ne varie plus au-delà de la deuxième minute d'irradiation, dans nos conditions.

Pour mieux prendre en compte la diminution significative de la densité des charges observée expérimentalement entre les mesures sous vide et celles faites à l'air après irradiation, ainsi que pour tenir compte de l'impact de la remise à l'air après irradiation [33], la densité nette des charges initiales considérée pour la simulation sous polarisation après irradiation a été divisée par 10. Dans ces conditions, les densités de charges obtenues sous court-circuit avant polarisation semblent quantitativement mieux reproduire celles mesurées.

4.4.3 Comportement électrique après irradiation

4.4.3.1 Charge d'espace en polarisation/dépolarisation

Le modèle a ensuite été confronté aux mesures de charges d'espace réalisées sur les films de PEbd irradiés par faisceau d'électrons dans les conditions décrites au chapitre 3. La Figure 4.24 compare les cartographies des densités de charges mesurées (Figure 4.24a) et simulées (Figure 4.24b) en fonction de la position au sein du diélectrique et du temps de polarisation/dépolarisation.

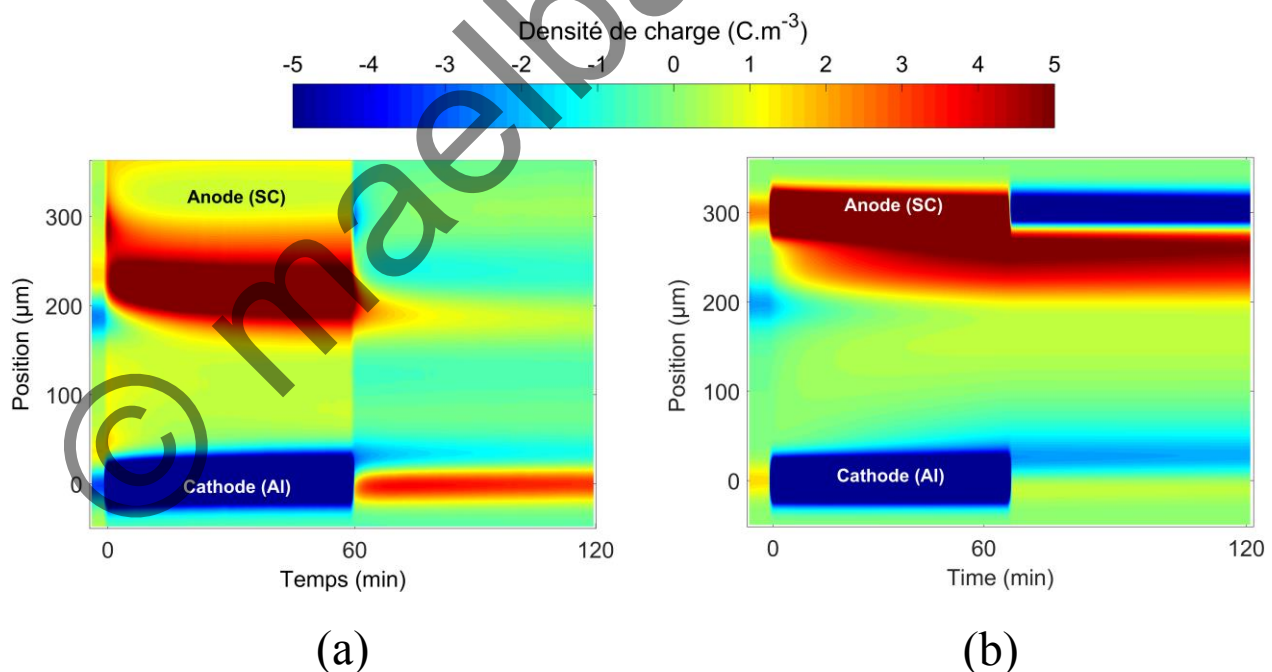


Figure 4.24 : Densités de charges (a) mesurées et (b) simulées, en fonction de la position au sein d'un film de PEbd de 300 μm d'épaisseur, irradié pendant 10 minutes en continu par faisceau d'électrons de 80 keV et 1 nA/cm². Polarisation pendant une heure sous un champ électrique continu de - 40 kV/mm suivie d'une heure de dépolarisation. Paramètres du Tableau 4.5.

4.6 Références bibliographiques du chapitre 4

- [1] S. Le Roy, G. Teyssedre, C. Laurent, G. C. Montanari et F. Palmieri, «Description of charge transport in polyethylene using a fluid model with a constant mobility: fitting model and experiments,» *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 39, p. 1427, 2006.
- [2] J. F. Briesmeister, «MCNPTM-A general Monte Carlo N-particle transport code,» *Version 4C, LA-13709-M, Los Alamos National Laboratory*, p. 2, 2000.
- [3] J. Baro, J. Sempau, J. M. Fernández-Varea et F. Salvat, «PENELOPE: an algorithm for Monte Carlo simulation of the penetration and energy loss of electrons and positrons in matter,» *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 100, pp. 31-46, 1995.
- [4] R. D. Cook, D. S. Malkus, M. E. Plesha et R. J. Witt, Concepts and applications of finite element analysis, vol. 4, Wiley New York, 1974.
- [5] COMSOL Multiphysics®, www.comsol.com, COMSOL Multiphysics Reference Manual, 2016.
- [6] W. B. J. Zimmerman, Multiphysics Modeling with Finite Element Methods, vol. 18, World Scientific Publishing Co Inc, ISBN : 9789812568434, 2006.
- [7] M. Tabatabaian, COMSOL® 5 for Engineers, Mercury Learning and information LLC, ISBN : 978-1942270423, 2016.
- [8] M. Hazewinkel, Encyclopedia of Mathematics : Hilbert space, Kluwer Academic Publishers, Springer Science, ISBN : 9781556080104, 2001.
- [9] J. J. van der Vegt et H. Van der Ven, «Space-time discontinuous Galerkin finite element method with dynamic grid motion for inviscid compressible flows : I. General formulation,» *Journal of Computational Physics*, vol. 182(2), pp. 546-585, 2002.
- [10] W. E. Schiesser et G. W. Griffiths, A compendium of partial differential equation models: method of lines analysis with Matlab, Cambridge University Press, ISBN : 9780521519861, 2009.
- [11] J. H. W. Frank et J. G. Verwer, «Stability of Implicit-Explicit linear multistep methods,» *Report-Department of Numerical Mathematics*, vol. 23, pp. 1-13.
- [12] E. J. Dickinson, H. Ekström et E. Fontes, «COMSOL Multiphysics®: Finite element software for electrochemical analysis. A mini-review,» *Electrochemistry communications*, vol. 40, pp. 71-74, 2014.
- [13] J. Noorishad, C. F. Tsang, P. Perrochet et A. Musy, «A perspective on the numerical solution of convection-dominated transport problems: A price to pay for the easy way out,» *Water Resources Research*, vol. 28(2), pp. 551-561, 1992.
- [14] B. P. Leonard, «A stable and accurate convective modelling procedure based on quadratic upstream interpolation,» *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, vol. 19(1), pp. 59-98, 1979.
- [15] R. Becker et R. Rannacher, «A feed-back approach to error control in finite element methods: basic analysis and examples,» *East-West Journal of Numerical Mathematics*, vol. 4, pp. 237-264, 1996.
- [16] P. N. Brown, A. C. Hindmarsh et L. R. Petzold, «Using Krylov methods in the solution of large-scale differential-algebraic systems,» *SIAM Journal on Scientific Computing*, vol. 15(6), pp. 1467-1488, 1994.
- [17] P. E. Gill, W. Murray et M. A. Saunders, «SNOPT: An SQP algorithm for large-scale constrained optimization,» *SIAM review*, vol. 47(1), pp. 99-131, 2005.
- [18] P. R. Amestoy, A. Buttari, I. S. Duff, A. Guermouche, J.-Y. L'Excellent et B. Uçar, Encyclopedia of Parallel Computing, Springer, ISBN : 9780387097657, 2011.
- [19] G. Chen, T. Tay, A. Davies, Y. Tanaka et T. Takada, «Electrodes and charge injection in low-density polyethylene using the pulsed electroacoustic technique,» *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 8(6), p. 867, 2001.

Toutes mes félicitations
pour l'obtention de ton doctorat.
Je te souhaite pleins de bonnes
Choses Maillys ! Félicitations
Hélène

Je te souhaite le
meilleur pour la suite
Tu peux être fier de toi. Jo.

félicitations pour ton
doctorat. En espérant
que tu trouveras ton
bonheur et ta réussite

Ton poto Maxime S.
Paris

félicitations Maillys, plein
de Bonheur pour la suite, tu
le mérites!

Félicitations, La bise
bon Vent pour Julien
la suite

Bien aimé
Le grand bravo!
Félicitation Docteur
et le meilleur pour
la suite! Charles

Maillys, si qu'on dit
mon petit père, félicitations
pour avoir perseveré et finalement
avoir fini ta thèse. Maintenant,
il te souhaite un bon vent qui
te portera où tu voudras.
Le meilleur, rose à venir!!!
Bonne chance, Amanda
Tlx, 01/12/2017.

Henri
Aisb
Félicitations pour toi
cher ami, et bon
courage pour la suite
de ta vie.

Félicitations pour ta
thèse et merci pour tes
conseils avisés sur
l'enseignement. Je te
souhaite de trouver ta
voie pour la suite et
de t'épanouir!
Séverine

félicitations, enfin libre!
Je te souhaite beaucoup de
réussite et de bonheur pour la
suite. Au plaisir de te revoir
ou labe. A bientôt
Maxime S.

félicitations Maillys, tu es vraiment
un gars super. Plein de bonheur
pour la suite!
Benjamin

Félicitations
à Monsieur.
pour la suite!
Bonne chance
pour la suite!
Félicitation pour
ton diplôme de
doctorat et bonne
chance pour la suite
Maxime

Toutes mes félicitations
Alis Heli

Félicitations Maillys pour
ton Doctorat, j'espère te
voir un jour devenir
le président de l'état
d'AFRIQUE

Silmo ~~curry~~

Congrats Dr. Maillys
Have a good life
playing football
Sidhant

Congrats, Grand
frère!

Fier de t'avoir
connu et
le meilleur et
le bonheur pour
la suite!

Abdel ~~Abdel~~

Je suis fier de toi Maillys et
je suis sûr qu'avec ta grande
détermination la seule limite
à la réalisation de tes rêves
est ton imagination.

Je te donne un vieux dicton.

Un suggi d'essai à nous: "d'année
temps on t'a percé".

(La soeur dit à la mère: "Donnez-moi
le temps de vous percer")

Ence

Bonne Chance
pour la suite.
Nicolas

Une nouvelle étape de ta vie bien enrichie. Félicitations
c'est un honneur pour moi de te compter parmi mes
amis. Restes toi-même. Vasant

Félicitations
Maillys pour ton
doctorat. Je te sou-
haite beaucoup de
réussite personnelle et
professionnelle pour la
suite.

Amicalement,
Christina

MESURE ET MODELISATION DU COMPORTEMENT DE MATERIAUX DIELECTRIQUES IRRADIES PAR FAISCEAU D'ELECTRONS.

Dans leurs usages courants comme isolants électriques, les matériaux solides organiques sont constitutifs aussi bien des câbles de transport d'énergie électrique, des circuits de commande et de conversion de puissance que des composants (micro)électroniques ou des systèmes embarqués (revêtement thermique des satellites, batteries d'accumulateurs...). La diversité des contraintes d'utilisation auxquelles ils sont soumis (champ électrique, rayonnement, température, humidité...) les prédisposent à emmagasiner des charges en leur sein, susceptibles d'affecter la fiabilité des systèmes qui en dépendent.

L'un des moyens communément mis en œuvre pour étudier le comportement électrique de ces charges est la mesure de la distribution spatio-temporelle des charges d'espace, en soumettant le diélectrique à une différence de potentiel continue à travers deux électrodes. Cette méthode ne permet cependant pas toujours de distinguer clairement la contribution des charges dues à la génération, d'une part, et celles dues aux phénomènes de transport, d'autre part. Cette étude propose une approche alternative, consistant à déposer sous vide des charges (électrons) au sein de l'isolant par le biais d'un faisceau d'électrons, à une position connue et en quantité maîtrisée, en prenant en compte d'autres processus physiques liés à l'implantation d'électrons afin de prévoir et modéliser le comportement de ces matériaux irradiés.

Des films de PolyEthylène basse densité (PEbd), préparés par thermomoulage, ont été irradiés par un faisceau d'électrons de 80 keV avec un flux de 1 nA/cm². Les mesures de charge d'espace par la méthode Electro-Acoustique Pulsée (PEA), réalisées d'abord in-situ, puis ex-situ sous polarisation électrique DC, confirment une localisation effective de charges au sein du matériau. Les résultats sous polarisation électrique après irradiation mettent en évidence une importante présence de charges positives dans la zone irradiée du diélectrique. Les caractérisations électriques des films PEbd irradiés montrent un comportement complètement différent de celui d'un même matériau non-irradié, laissant penser à une modification de la structure chimique du matériau. Des mesures physico-chimiques (spectroscopie infra-rouge, Photoluminescence et Analyse Enthalpique Différentielle-DSC) sur ces films PEbd irradiés, ne montrent pas une dégradation significative de la structure chimique du diélectrique qui expliquerait le comportement électrique observé sous polarisation post-irradiation. Des mesures complémentaires montrent le comportement réversible du PEbd irradié puis polarisé, qui serait uniquement lié à la présence des charges générées par le faisceau.

Les données expérimentales de cette étude ont parallèlement alimenté un modèle numérique de transport de charges, développé pour tenir compte des contraintes sous irradiation. Ce modèle a permis de reproduire les résultats d'implantation de charge par faisceau d'électrons in-situ ainsi que la majorité des processus électriques observés sur du PEbd irradié puis polarisé. Il confirme l'impact de la charge déposée par faisceau d'électrons sur le comportement sous polarisation et permet de conclure quant à l'origine des charges positives observées post-irradiation, qui seraient dues aussi bien aux phénomènes d'injection aux électrodes qu'à la création de paires électrons/trous par le faisceau d'électrons pendant l'irradiation.

Mots clés : Charges d'espace, Irradiation par faisceau d'électrons, Modélisation fluide du transport de charges, FTIR, DSC, Photo-luminescence et Electro-luminescence.

MEASUREMENT AND MODELLING OF DIELECTRIC MATERIALS BEHAVIOUR UNDER ELECTRON-BEAM IRRADIATION.

In their common uses as electrical insulators, organic solid materials are constitutive of electric power transmission cables, power control and conversion circuits as well as (micro) electronic components or embedded systems (thermal coating of satellites, batteries of accumulators, etc.). Under various constraints of use (electric field, radiation, temperature, humidity ...) they can accumulate charges in their bulk which could affect the reliability of the systems in which they are employed.

One of the commonly used means to study the electrical behavior of these charges is to measure the spatiotemporal distribution of charges by subjecting the dielectrics to a continuous potential difference between two electrodes. However, this method does not always allow clearly distinguishing the contribution of charges due to generation on the one hand and the one due to transport phenomena on the other hand. This study proposes an alternative approach, consisting in generating charges (electrons) within the electrical insulation using an electron-beam under vacuum. The charges are hence deposited at a known position and in a controlled quantity. Other physical processes related to the implantation of electrons must then be taken into account in order to predict and model the behavior of these irradiated materials.

Low-density polyethylene (LDPE) films, prepared by thermal molding, were irradiated by a 80 keV electron-beam with a current flux of 1 nA/cm². Space charge measurements using the Pulsed Electro-Acoustic (PEA) method, performed first in-situ and then ex-situ under DC electrical polarization, confirm an effective localization of charges within the material. The results under electrical polarization after irradiation show an important amount of positive charges in the irradiated zone of the dielectric. The electrical characterizations of irradiated LDPE films show a completely different behavior compared to the same non-irradiated material, suggesting a modification of the chemical structure of the material. Physico-chemical measurements (infrared spectroscopy, Photoluminescence and Differential Scanning Calorimetry-DSC) on these irradiated PEbd films do not show a significant degradation of the chemical structure of the dielectric which would explain the observed electrical behavior under post-irradiation polarization. Additional measurements show the reversible behavior of the irradiated then polarized PEbd, which would be only related to the presence of the charges generated by the beam.

The experimental data of this study have simultaneously fed a numerical model of charge transport, developed to take into account the irradiation constraints. This model allows reproducing the in-situ results of charge implantation by the electron beam as well as the majority of the electrical processes observed on irradiated and polarized LDPE. It confirms the impact of the electron-beam deposited charge on the behavior under polarization and allows concluding on the origin of the positive charges observed after irradiation, which would be due to injection at the electrodes as well as to the creation of electron-hole pairs by the electron-beam during irradiation.

Keywords : Space charge, Electron beam irradiation, fluid charge transport modeling, FTIR, DSC, Photo-luminescence, Electro-luminescence.

