



**HAL**  
open science

# Compréhension et modélisation des mécanismes physiques liés à la charge d'espace dans les polymères isolants sous contrainte électrique

Séverine Le Roy

► **To cite this version:**

Séverine Le Roy. Compréhension et modélisation des mécanismes physiques liés à la charge d'espace dans les polymères isolants sous contrainte électrique. Matériaux. Université Paul Sabatier (Toulouse 3), 2018. tel-03451282

**HAL Id: tel-03451282**

**<https://theses.hal.science/tel-03451282>**

Submitted on 26 Nov 2021

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Document de synthèse  
présenté en vue de l'obtention de

## **L'habilitation à Diriger des Recherches**

HDR présentée et soutenue par **Séverine LE ROY**

Le 12 décembre 2018

---

### **Compréhension et modélisation des mécanismes physiques liés à la charge d'espace dans les polymères isolants sous contrainte électrique**

---

|                   |  |             |
|-------------------|--|-------------|
| Stéphane Holé     | Professeur UPMC - Sorbonne Universités | Rapporteur  |
| Olivier Lesaint   | Directeur de Recherches CNRS           | Rapporteur  |
| Patrice Bourson   | Professeur Université de Lorraine      | Rapporteur  |
| Yuriy Serdyuk     | Professeur, Chalmers University, SUEDE | Examinateur |
| Kremena Makasheva | Directrice de Recherches CNRS          |             |
| Christian Laurent | Directeur de Recherches CNRS           |             |
| Gilbert Teyssède  | Directeur de Recherches CNRS           |             |

Laboratoire Plasma et Conversion d'Energie (LAPLACE)  
Université Paul Sabatier Bat. 3R3  
118 route de Narbonne, 31062 Toulouse Cedex 9, France  
severine.leroy@laplace.univ-tlse.fr  
05.61.55.73.02



|  |              |
|--|--------------|
| <b>CURRICULUM VITAE</b> .....  | <b>5</b>     |
| <b>A. RENSEIGNEMENTS PERSONNELS</b> .....  | <b>5</b>     |
| <b>B. DIPLOMES ET TITRES</b> .....   | <b>5</b>     |
| <b>C. EXPERIENCES PROFESSIONNELLES</b> .....   | <b>5</b>     |
| <b>D. ACTIVITES D'ENSEIGNEMENT</b> .....   | <b>6</b>     |
| <b>E. ACTIVITES D'ENCADREMENT</b> .....  | <b>6</b>     |
| <b>F. SYNTHÈSE DE LA PRODUCTION SCIENTIFIQUE AU 1<sup>ER</sup> MARS 2018</b> .....             | <b>6</b>     |
| <br><b>POSITIONNEMENT AU SEIN DU LAPLACE ET DE L'EQUIPE DSF</b> .....                          | <br><b>7</b> |
| <br><b>ACTIVITES DE RECHERCHE</b> .....  | <br><b>9</b> |
| <b>A. PREAMBULE</b> .....  | <b>9</b>     |
| <b>B. INTRODUCTION</b> .....   | <b>11</b>    |
| <b>C. PHYSIQUE DES MATERIAUX DIELECTRIQUES ORGANIQUES</b> .....                                | <b>14</b>    |
| <b>C.1. Rappels: théorie des bandes appliquée aux isolants solides organiques</b> ....         | <b>14</b>    |
| <b>C.2. Mécanismes de transport de charges dans les isolants solides organiques.</b> <b>16</b> |              |
| C.2.a) Génération de porteurs électroniques .....  | 16           |
| C.2.b) Mécanismes de transport de charges électroniques.....                                   | 19           |
| C.2.c) Génération de porteurs ioniques .....   | 21           |
| C.2.d) Transport de charges ioniques .....   | 21           |
| <b>D. MODELES FLUIDES</b> .....  | <b>22</b>    |
| <b>D.1. Modèles fluides à deux niveaux de pièges</b> .....                                     | <b>23</b>    |
| <b>D.2. Modèle fluide à distribution exponentielle de pièges</b> .....                         | <b>26</b>    |
| <b>D.3. Autres types de modèles rencontrés dans la littérature</b> .....                       | <b>28</b>    |
| <b>D.4. Un mot sur les schémas numériques</b> .....  | <b>29</b>    |
| <b>D.5. Optimisation</b> .....   | <b>31</b>    |
| <b>E. EVALUATION ET EVOLUTIONS DES HYPOTHESES PHYSIQUES DES MODELES</b> .....                  | <b>32</b>    |
| <b>E.1. Evaluation du modèle à deux niveaux de pièges pour du LDPE</b> .....                   | <b>32</b>    |
| E.1.a) Mesures sous tension continue en polarisation/dépolarisation .....                      | 33           |
| E.1.b) Mesures sous tension alternative .....  | 36           |
| E.1.c) Points forts et faiblesses du modèle à deux niveaux de pièges .....                     | 37           |
| <b>E.2. Amélioration du modèle de génération de charges aux interfaces</b> .....               | <b>39</b>    |
| E.2.a) Modélisation de l'électroluminescence sous tension AC.....                              | 39           |
| E.2.b) Prise en compte d'une zone d'interface et d'une nouvelle loi d'injection.....           | 40           |
| E.2.c) Interfaces gaz/diélectrique .....   | 44           |
| E.2.d) Modélisation des paquets de charges .....   | 45           |
| E.2.e) Interfaces à l'échelle nanométrique .....   | 46           |
| <b>E.3. Caractérisation et modélisation de la réponse d'un matériau polaire</b> .....          | <b>49</b>    |
| E.3.a) Compréhension des mécanismes physiques dans du PEN - aspect<br>experimental .....       | 50           |
| E.3.b) Implémentation de la polarisation dans un modèle de transport de charges...             | 55           |

|  |            |
|--|------------|
| E.3.c) Validation du modèle à deux niveaux de pièges pour le PEN .....   | 57         |
| <b>F. APPLICATION DES MODELES AUX CABLES HVDC.....</b>   | <b>59</b>  |
| <b>F.1. Matériaux de câbles à isolation synthétique pour des applications au transport d'énergie HVDC.....</b>                           | <b>59</b>  |
| <b>F.2. Modèle macroscopique.....</b>  | <b>60</b>  |
| <b>F.3. Modélisation fluide pour une géométrie cylindrique .....</b>   | <b>62</b>  |
| <b>G. APPLICATION DES MODELES AU DOMAINE DU SPATIAL.....</b>   | <b>65</b>  |
| <br>   |            |
| <b>PERSPECTIVES.....</b>   | <b>73</b>  |
| <b>A. EVOLUTION DES MODELES .....</b>  | <b>73</b>  |
| <b>A.1. matériaux polaires .....</b>   | <b>73</b>  |
| <b>A.2. génération et transport des ions .....</b>   | <b>74</b>  |
| <b>A.3. interfaces/matériaux composites .....</b>  | <b>75</b>  |
| <b>A.4. Modèles macroscopiques .....</b>   | <b>76</b>  |
| <b>B. DEVELOPPEMENT NUMERIQUE DES MODELES FLUIDES .....</b>  | <b>77</b>  |
| <b>C. COMPREHENSION DES PROCESSUS DE VIEILLISSEMENT ET DEVELOPPEMENT DE MODELES DE VIEILLISSEMENT ASSOCIES AUX MODELES FLUIDES .....</b> | <b>78</b>  |
| <br>   |            |
| <b>REFERENCES.....</b>   | <b>81</b>  |
| <br>   |            |
| <b>LISTE COMPLETE DES PUBLICATIONS.....</b>  | <b>89</b>  |
| <b>A. PUBLICATIONS DANS DES REVUES INTERNATIONALES A COMITE DE LECTURE.....</b>  | <b>89</b>  |
| <b>B. CONFERENCES INVITEES .....</b>   | <b>92</b>  |
| <b>C. CONFERENCES INTERNATIONALES AVEC PUBLICATIONS.....</b>   | <b>94</b>  |
| <b>D. CONFERENCES INTERNATIONALES ET NATIONALES SANS PUBLICATIONS.....</b>   | <b>100</b> |
| <b>E. CONFERENCES NATIONALES AVEC PUBLICATIONS .....</b>   | <b>102</b> |
| <b>F. CHAPITRES D'OUVRAGES .....</b>   | <b>103</b> |
| <b>G. SEMINAIRES INVITES .....</b>   | <b>103</b> |
| <b>H. RAYONNEMENT.....</b>   | <b>104</b> |
| <b>H.1. Responsabilités conférences.....</b>   | <b>104</b> |
| <b>H.2. Collaborations Universitaires .....</b>  | <b>104</b> |
| <b>H.3. Activité Editoriale.....</b>   | <b>104</b> |
| <b>H.4. Consultance – Expertise – Comités de Sélection.....</b>  | <b>104</b> |
| <b>H.5. Responsabilités collectives .....</b>  | <b>105</b> |
| <b>H.6. Participation à des jurys de thèses extérieures au groupe.....</b>   | <b>105</b> |
| <br>   |            |
| <b>LISTE DES MEMOIRES ET DIPLOMES DIRIGES .....</b>  | <b>107</b> |
| <b>A. DOCTORANTS: .....</b>  | <b>107</b> |
| <b>B. MASTERS - STAGIAIRES .....</b>   | <b>108</b> |

|   |            |
|---|------------|
| <b>PROGRAMMES DE COOPERATION ET CONTRATS.....</b> | <b>111</b> |
| <b>A. PROJETS INTERNATIONAUX .....</b>            | <b>111</b> |
| <b>B. PROJETS NATIONAUX.....</b>                  | <b>111</b> |
| <b>C. PROJETS REGIONAUX .....</b>                 | <b>112</b> |
| <b>D. PROJETS INDUSTRIELS.....</b>                | <b>112</b> |
| <br>  |            |
| <b>COPIES DE 5 PUBLICATIONS CHOISIES .....</b>    | <b>113</b> |



# CURRICULUM VITAE

## A. RENSEIGNEMENTS PERSONNELS

Nom : Séverine LE ROY

Date de Naissance : 30/08/1977

Nationalité : française

Situation familiale : vie maritale, 2 enfants

### Adresse personnelle :

7 rue des tilleuls  
31190 AUTERIVE

### Adresse professionnelle :

LAPLACE Bâtiment 3R3  
Université Paul Sabatier  
118 route de Narbonne  
31062 TOULOUSE Cedex 09  
tél : 05.61.55.73.02 fax : 05.61.55.64.52  
Email : severine.leroy@laplace.univ-tlse.fr

## B. DIPLOMES ET TITRES

Juin 1999 **Licence** de Chimie (mention AB), Université de Franche-Comté, Besançon

Juin 2000 **Maîtrise** de Chimie, Université Joseph Fourier (UJF), Grenoble

Juin 2001 : **D.E.A Chimie Physique Moléculaire et Structurale**, Université Joseph Fourier, Grenoble

30/11/2004 : **Doctorat d'Université spécialité Génie Electrique**, effectué au Laboratoire de Génie Electrique de Toulouse (LGET) et au Centre de Physique des Plasmas de Toulouse (CPAT) sous la direction de Mrs C. Laurent (LGET) et P. Ségur (CPAT)

Prix de thèse de l'école doctorale Génie Electrique, Electronique, Télécommunications (GEET)

## C. EXPERIENCES PROFESSIONNELLES

**Oct 2001-nov 2004: Thèse de Doctorat – Génie Electrique**, 'Modélisation numérique des phénomènes de transport électrique dans un isolant polyéthylène sous contrainte électrique'

Centre Physique des Plasmas et de leurs Applications de Toulouse(CPAT)/  
Laboratoire de Génie Electrique de Toulouse (LGET)

Directeurs: P. Ségur (CPAT)/C. Laurent (LGET)

- Jan-Mars 2003:** Séjour de 3 mois à Tokyo, Japon, au Musashi Institute of Technology (MIT)  
 - Mesure de la charge d'espace par la méthode Electro-Acoustique Pulsée (PEA) en température, sous la direction de Y. Tanaka
- 2004–2006:** Post-doctorat 'Benefits of HVDC links in the European power electrical system and improved HVDC technology (HVDC)', High Voltage Laboratory, Université de Leicester, U.K.
- 2006-2010:** Chargée de Recherche CNRS 2<sup>ème</sup> Classe – section Comité National: 08 au Laboratoire Plasma et Conversion d'Energie (LAPLACE) UMR 5213 – Université Paul Sabatier, Toulouse - Promue CR1 en 2010

#### D. ACTIVITES D'ENSEIGNEMENT

- 2003-2004: TD **Physique – Chimie - Dosimétrie** - 1<sup>ère</sup> année de faculté de Médecine  
**20h**
- 2008 à 2015: TD et TP **Electricité** – 1<sup>ère</sup> année IUT Génie Mécanique et Productique Techniques Aérospatiales - Module Electricité, Electronique, Automatique (EEA).  
**20 h/an**
- 2010/2011: TD et TP **Electrotechnique** – 1<sup>ère</sup> année IUT Génie Mécanique et Productique Techniques Aérospatiales - Module Electricité, Electronique, Automatique (EEA).  
**33 h/an**
- 2012 à 2015: Cours et TD **Solid States Physics** – Master 2 International Electronic Systems for Embedded and Communicating Applications (ESECA) option Microwave engineering  
**14h/an**
- 2017- Cours et TD Physique des matériaux - 1<sup>ère</sup> année ENSEEIHT GEA  
**32h eq TD/an**

#### E. ACTIVITES D'ENCADREMENT

- Co-Encadrement effectif de 7 doctorants, 6 masters
- Participation à 5 jurys de thèse, dont 2 extérieurs à l'UPS, et un à KTH - Royal Institute of Technology (Suède)

#### F. SYNTHÈSE DE LA PRODUCTION SCIENTIFIQUE AU 1<sup>ER</sup> MARS 2018

- 27 publications dans des revues internationales à comité de lecture
- 5 conférences invitées présentées dans des conférences internationales
- 45 publications dans des conférences internationales avec comité de lecture
- 20 publications dans des conférences internationales ou nationales sans comité de lecture
- 2 chapitres d'ouvrage

## POSITIONNEMENT AU SEIN DU LAPLACE ET DE L'EQUIPE DSF

Le laboratoire est structuré en 12 équipes de recherches, qui participent chacune au tryptique plasma/matériau/système. Ces groupes sont constitués d'une dizaine de permanents chercheurs et enseignants-chercheurs et d'un nombre équivalent de doctorants et post-doctorants. Ils sont renforcés par les Ingénieurs et Techniciens des trois services d'électronique, de mécanique et d'instrumentation. La politique scientifique du laboratoire s'appuie également sur la définition et le développement de thèmes transversaux fédératifs, au nombre de quatre à ce jour. Cette structuration est illustrée ci-dessous:

| Structuration des activités scientifiques du LAPLACE |        |      |       |     |     |      |     |       |    |    |         | Intitulé  | Date de démarrage |  |
|--|--------|------|-------|-----|-----|------|-----|-------|----|----|---------|-----------|-------------------|--|
| Actions Scientifiques Transversales                  |        |      |       |     |     |      |     |       |    |    |         | DP        | Juin 2014         |  |
|  |        |      |       |     |     |      |     |       |    |    |         | IEP       | Juin 2012         |  |
|  |        |      |       |     |     |      |     |       |    |    |         | OSDP      | Janvier 2007      |  |
|  |        |      |       |     |     |      |     |       |    |    |         | 3EP       | Janvier 2007      |  |
| Tryptique fondateur                                  |        |      |       |     |     |      |     |       |    |    |         | systèmes  |                   |  |
|  |        |      |       |     |     |      |     |       |    |    |         | matériaux |                   |  |
|  |        |      |       |     |     |      |     |       |    |    |         | plasmas   |                   |  |
| Groupe de recherche                                  | GREPHE | PRHE | AEPPT | MPP | DSF | MDCE | GRE | GREM3 | LM | CS | GENESYS | CODIASE   | <b>LAPLACE</b>    |  |

Je fais partie de l'équipe Diélectriques Solides et Fiabilité (DSF), qui est dirigée par L. Berquez et dont les membres permanents du groupe au 1<sup>er</sup> janvier 2018 sont:

F. Baudoin (MCf)

L. Berquez (PR)

L. Boudou (MCf)

V. Griseri (MCf)

N. Guibert (IE, CNRS)

C. Laurent (DR, CNRS)

S. Le Roy (CR, CNRS)

JJ. Martinez-Vega (PR)

D. Marty-Dessus (PR)

D. Mary (MCf)

G. Teyssède (DR, CNRS)

C. Villeneuve-Faure (MCf)

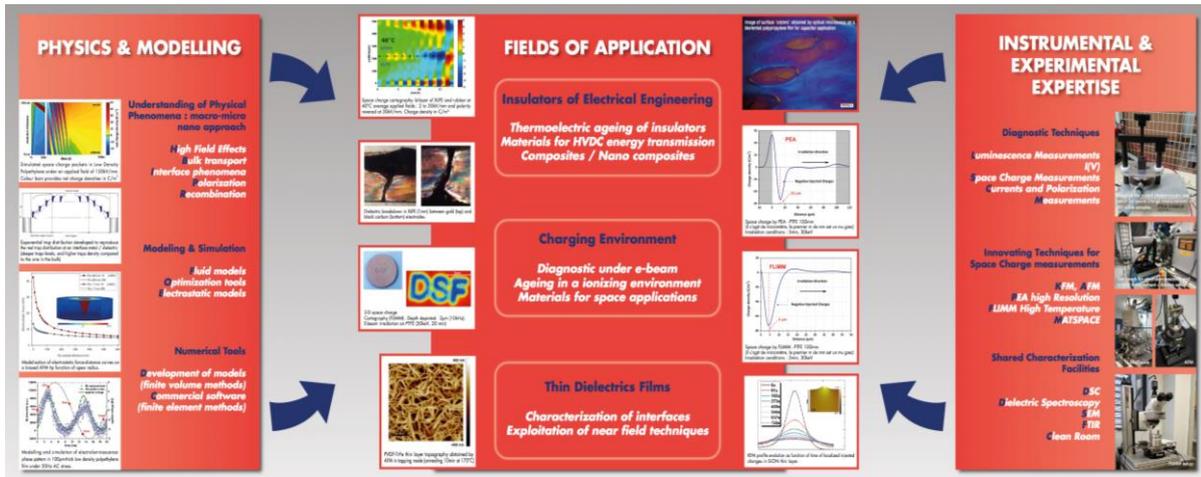
Les activités de l'équipe ont pour objectif la compréhension des mécanismes de génération et de transport de charges dans les isolants, ainsi que l'identification des processus conduisant au vieillissement et à la rupture de matériaux compte tenu des contraintes fonctionnelles rencontrées dans les dispositifs. Pour cela, des **techniques de**

**caractérisation originales** sont mises en œuvre et l'on s'appuie sur une **simulation numérique des phénomènes de transport**.

Les activités que nous menons contribuent notamment à identifier des phénomènes initiateurs de la dégradation, et visent de façon plus large à :

- Corréler les aspects chimiques et structuraux des matériaux à leurs propriétés électriques ;
- Rendre compte de leur comportement par des modèles physiques ;
- Améliorer leur formulation et leurs performances.

La structure de l'équipe est présentée ci-dessous:



Dans ce contexte, mes activités sont centrées autour du pôle "physique et modélisation", même si la majorité des projets auxquels je participe sont à la frontière entre le pôle physique et modélisation et un des 3 axes applicatifs de l'équipe, qui sont : les matériaux pour le génie électrique, l'environnement chargeant et les matériaux en couches minces.

# ACTIVITES DE RECHERCHE

## A. PREAMBULE

L'objectif scientifique de mon projet de recherche est de comprendre le comportement des isolants solides organiques soumis à une contrainte électrique, de définir des modèles de transport et d'accumulation de charges dans les matériaux, et de rendre compte des phénomènes réversibles et irréversibles liés à la présence de ces charges. Mon expertise porte donc avant tout sur la physique et la simulation des mécanismes de transport de charges dans ces matériaux isolants. Il est cependant difficile de séparer les différents projets sur lesquels j'ai eu à travailler en catégories bien définies, tant la modélisation est liée à la partie expérimentale et à l'application qui est visée derrière. En effet, la compréhension des mécanismes liés au transport de charges dans des matériaux diélectriques organiques sous contrainte électrique englobe des domaines de recherche différents, allant de la mesure dédiée à la compréhension, à la mise en équation, mais aussi au traitement numérique et à la simulation. Ceci est d'autant plus difficile qu'une part non négligeable de mes activités de recherches est liée à la caractérisation de matériaux pour des domaines très appliqués, notamment pour ce qui est de la transmission de l'électricité. J'ai donc choisi dans un premier temps de décrire les modèles physiques développés dans l'équipe, de manière assez générale, sans donner de résultat de simulation ou de comparaison à l'expérience. Je présente ensuite certains résultats expérimentaux qui ont permis d'amener des évolutions dans les modèles de transport, ainsi que la manière dont elles ont été prises en compte en terme de modélisation. J'ai ensuite choisi 2 domaines applicatifs pour lesquels les modèles ont été utilisés, où je décris pour chacun i/ les mesures effectuées pour caractériser les phénomènes physiques, et ii/ des comparaisons entre simulation et expériences afin de valider les modèles. Le rapport est donc divisé en 5 parties, qui sont :

- 1) Une introduction sur la modélisation des phénomènes de transport dans différents domaines de recherche ainsi qu'un récapitulatif des connaissances actuelles sur les phénomènes physiques impliqués dans le comportement d'un matériau diélectrique organique sous contraintes électrique et thermique
- 2) les modèles physiques fluides développés au sein de l'équipe et dans la littérature jusqu'à maintenant, avec une parenthèse particulière sur le traitement des schémas numériques
- 3) la caractérisation de matériaux et les évolutions des modèles liées à ces observations expérimentales
- 4) la caractérisation et la modélisation de matériaux isolants pour le transport de l'énergie électrique sous contrainte HVDC
- 5) la caractérisation et la modélisation du comportement de la charge dans un isolant solide sous environnement chargeant

Je tenais aussi à ajouter que la plupart des études liées à la simulation ont été effectuées en collaboration avec un (des) expérimentateur(s) de l'équipe, celle-ci étant particulièrement

bien placée en matière de caractérisation de matériaux isolants, de l'échelle nanométrique à l'échelle macroscopique, et ce tant sur les mesures de charges d'espace que sur d'autres mesures telles que des mesures de courants ou de luminescences.

## B. INTRODUCTION

L'utilisation de matériaux organiques solides pour l'isolation électrique ouvre de nombreuses perspectives dans le domaine de la gestion et de la conversion de l'énergie électrique. Leurs propriétés mécaniques, thermiques, électriques, mais aussi leur faible coût ainsi que la possibilité de les recycler font d'eux des matériaux de choix. Cependant, les contraintes (température, champ électrique, rayonnement ...) auxquelles ces isolants sont soumis sont à l'origine de la création de charges électriques dans le volume. L'interaction de ces charges avec le matériau organique est un facteur de diminution de la fiabilité des systèmes et affecte la sûreté de fonctionnement des dispositifs dans lesquels ils sont utilisés. Cette accumulation peut en effet augmenter le champ électrique localement, qui, atteignant un champ supérieur au champ de rupture, donnera lieu à une rupture diélectrique. La présence de charges d'espace peut aussi donner lieu à une libération d'énergie, par recombinaison de charges de signe opposé, par dissociation de charges, par injection de porteurs ayant une énergie non négligeable. Cette énergie, en se dissipant, peut casser des liaisons chimiques et faire vieillir prématurément le matériau.

La compréhension du comportement des charges reste donc un enjeu scientifique et technologique majeur, et peut être considérée comme un verrou au développement de systèmes isolés moins encombrants et de plus forte puissance, mais aussi à la mise en œuvre et au dimensionnement de matériaux isolants plus compétitifs par rapport à une application donnée. Cette compréhension des phénomènes physiques est un préalable à la modélisation du transport de charges dans les isolants solides, qui permettrait enfin de prévoir l'évolution de la charge interne et de décrire la réponse globale du matériau sur laquelle repose la définition des facteurs de dimensionnement des isolants dans les composants et systèmes, particulièrement sous contrainte continue. A plus long terme, le développement de tels modèles permettrait aussi de répondre au problème de vieillissement des matériaux sous contrainte électrique voire thermoélectrique. La formulation de lois de comportement sous contrainte passe donc nécessairement par des modèles permettant de décrire les phénomènes de transport.

Malgré cet engouement pour les matériaux organiques solides utilisés comme isolants électriques, il est encore difficile de décrire correctement leur comportement sous contrainte électrique/thermoélectrique, et donc de prédire leur réponse électrique et leur durée de vie. Cette difficulté vient notamment du fait que dans le domaine du génie électrique, les travaux de recherche se sont d'abord tournés vers une approche 'système', et non sur une approche 'matériaux'. La compréhension des phénomènes physiques s'est développée plus rapidement dans le domaine des semi-conducteurs que dans celui des isolants solides. Cependant, d'autres points importants sont venus freiner la compréhension des mécanismes physiques en jeu :

- La complexité des matériaux utilisés, qui ne sont pas des matériaux cristallins, mais semi-cristallins ou amorphes, et qui présentent donc des 'inhomogénéités' à plus ou moins grande échelle (zones amorphes et cristallines à l'échelle nanométrique). Ces matériaux sont souvent des matériaux industriels, qui sont

optimisés par les fabricants en y ajoutant des substances renforçant certaines propriétés spécifiques. L'ajout de telles substances vient modifier la structure chimique du matériau (modification de la chaîne, réticulation, résidus...), et vient encore complexifier la structure physique du matériau. Ceci est d'autant plus vrai que les chercheurs impliqués dans des travaux avec des industriels ne sont pas toujours au courant de la composition réelle des matériaux ...

- La complexité de la réponse de ces matériaux. Contrairement aux matériaux semi-conducteurs, dont la réponse électrique est rapide, et dont la modélisation est souvent développée en régime stationnaire, les isolants solides organiques présentent une réponse plus (très) lente. Il est difficile dans ce cas d'appréhender l'état stationnaire, et la modélisation temporelle devient primordiale.

Avant le développement des mesures de charges d'espace [1,2,3], qui permettent d'avoir une information sur la position et la quantité de charges dans le volume du matériau, les modèles développés se basaient sur des mesures intégrantes de type mesures de courant de conduction ou mesures de potentiel de surface. Les théories développées étaient soit pour des processus dominants à l'électrode (Schottky ou Fowler-Nordheim) [4], soit pour des processus dans le volume (Poole-Frenkel, Space Charge Limited Current - SCLC) [5,6]. On peut citer notamment la théorie de courant limité par charge d'espace (SLCL), qui permet de relier le courant mesuré au potentiel appliqué, pour des hypothèses spécifiques (électrons uniquement, charges intrinsèques ne perturbant pas la relation de Laplace à faible champ, état stationnaire, pas de pièges ou un seul niveau de pièges ..) [6]. Ces modèles, simples par rapport à des modèles de transport fluides ou particulaires, permettent encore maintenant pour certains de décrire correctement les mesures effectuées de  $I(V)$  [7], mais ne permettent pas de connaître la distribution de la charge dans les matériaux en temps réel et donc la distribution en champ. L'avènement des mesures de charge d'espace (1990-2000) a largement permis l'amélioration des connaissances physiques au niveau des matériaux isolants, alors que le développement des capacités informatiques a rendu possible le développement de modèles plus sophistiqués, permettant d'avoir accès à des informations en volume.

Il existe de nombreuses manières d'aborder la modélisation du comportement d'un matériau isolant électrique organique sous contrainte électrique, que ce soit en terme de simplicité (analytique i.e. modèles 'simples' type SCLC / numériques), en terme de géométrie (0D -> 3D), et aussi au niveau de la méthode (modèles cinétiques / modèles fluides / Monte Carlo). Sans entrer dans les détails, nous avons choisi de focaliser la modélisation sur les modèles fluides, qui ont pour avantage de ne pas traiter les 'particules' une à une, mais plutôt de manière 'macroscopique' ou comme un fluide.

Côté modélisation fluide du transport de charges, de nombreux travaux se basent sur la physique des semi-conducteurs organiques pour analyser les processus en jeu dans les isolants solides organiques [6,8,9,10], avec des concepts de diagrammes de bandes et de conduction par saut ou "hopping". Les simulations du transport de charges dans ces

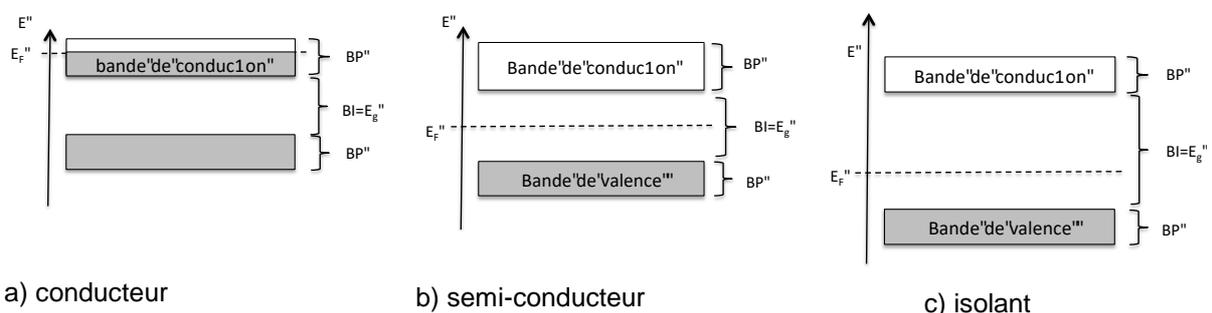
matériaux semi-conducteurs peuvent être des simulations stationnaires [11], mais sont de plus en plus développées en temporel. Dans les semi-conducteurs comme dans d'autres domaines (gaz, liquides), la littérature est cependant foisonnante sur ce sujet, et a permis et permet encore le développement de ce genre de modèles appliqués aux isolants électriques organiques. Il n'est pas question ici de faire une revue de ce qui se fait dans ces autres domaines sur le sujet, mais on peut notamment citer, comme références en la matière Bogaerts et al [12] ou des chercheurs du Laplace [13,14] pour les plasmas et [15] pour les liquides, ainsi que [9,10] pour le développement de modèles de transport de charges dans les semi-conducteurs organiques.

Dans ce qui va suivre, je rappellerai succinctement la théorie des bandes associée aux isolants organiques, ainsi que les conditions de génération et de transport de charges électriques et ioniques dans les matériaux isolants électriques organiques. Une seconde partie sera dédiée à la présentation des différents modèles de transport de charges dans les isolants solides organiques développés dans l'équipe et ceux existants dans la littérature. La troisième partie présentera une évaluation des modèles de transport de charges ainsi que les différentes évolutions apportées. 2 exemples de validation de ces modèles pour des applications HVDC (cas particulier du génie électrique) et spatiales seront ensuite présentées.

## C. PHYSIQUE DES MATERIAUX DIELECTRIQUES ORGANIQUES

### C.1. RAPPELS SUR LA THEORIE DES BANDES APPLIQUEE AUX ISOLANTS SOLIDES ORGANIQUES

La théorie des bandes a d'abord été développée dans les solides cristallins, et ensuite adaptée aux polymères, semi-conducteurs ou isolants. Un atome seul est constitué d'un noyau et d'électrons qui gravitent autour du noyau. Ces électrons sont localisés dans des orbitales atomiques, ayant des niveaux d'énergie bien définies. Dans une molécule, la mise en commun d'électrons permet de créer des liaisons covalentes, ces électrons se répartissant maintenant dans des orbitales moléculaires (OM). Le grand nombre d'atomes ou de molécules constituant un matériau cristallin implique un grand nombre d'OM de même énergie. On parle donc d'élargissement de ces niveaux énergétiques qui vont jusqu'à former des bandes d'énergie dans lesquelles les électrons se répartissent et peuvent se déplacer. Entre ces bandes 'permises', il existe des bandes dites interdites. Le principe d'exclusion de Pauli permet ensuite de remplir ces bandes et de connaître le nombre d'électrons disponibles dans chaque bande. En fonction de cette répartition, le matériau sera isolant, semi-conducteur (SC) ou conducteur (Figure 1). Par exemple, pour un matériau conducteur (Figure 1a), des électrons remplissent partiellement la dernière bande permise, aussi appelée bande de conduction. Lorsque ces électrons vont acquérir une énergie, ils vont pouvoir se mouvoir dans cette bande de conduction. Dans le cas des semi-conducteurs et des matériaux isolants (Figure 1b et c), la dernière bande occupée (bande de valence) est pleine, et la prochaine bande permise est séparée par un gap plus ou moins grand selon que l'on parle d'un SC ou d'un isolant. Il n'y a donc pas de possibilité de mouvement, à part si l'électron acquiert une énergie suffisante pour 'sauter' dans la prochaine bande permise, i.e. la bande de conduction. Cette énergie peut notamment être acquise par agitation thermique, notamment dans le cas des semi-conducteurs de bande interdite faible ( $<1$  eV). Pour les isolants solides désordonnés, il n'existe pas d'arrangement à longue distance, les niveaux d'énergie restent localisés et il n'y a pas de création de bandes d'énergie.



**Figure 1.** Remplissage des niveaux d'énergie à  $T=0K$ : a) cas d'un conducteur, b) cas d'un semi-conducteur, dont la bande interdite, ou  $E_G < 2$  eV, c) cas d'un isolant.

### C.1.a) Notion de diagramme de bandes pour des polymères

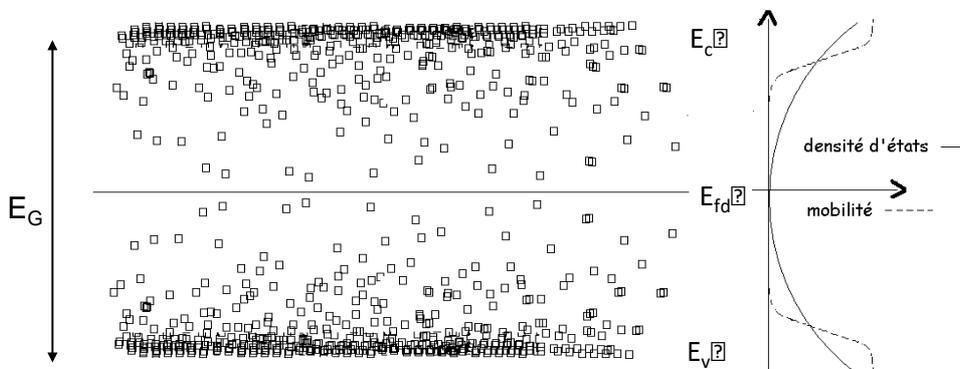
Les matériaux polymères sont constitués d'unités de répétition (monomères), reliées par de nombreuses liaisons covalentes. Comme dans les solides cristallins, il peut exister un certain ordre au sein de ces matériaux polymères. Cependant, leur structure chimique (monomères constitutifs du polymère), leur structure physique (polymère linéaire ou ramifié, conformation de la chaîne...), leur élaboration (type de polymérisation, additifs), viennent perturber l'organisation des niveaux énergétiques à longue distance. Ainsi, ces polymères ne sont que partiellement cristallins. Il existe des régions ordonnées (i.e. cristallines), et des régions totalement désordonnées (amorphes). Dans les zones cristallines uniquement, on retrouvera cette notion de diagramme de bandes, avec la présence d'une bande de valence et d'une bande de conduction.

De plus, le désordre lié à la structure physique et chimique du polymère (ramifications, présence d'additifs, de groupes oxydés) affecte l'architecture du système moléculaire et modifie les états dégénérés de la bande de valence et de la bande de conduction, pour former des états localisés dans la bande interdite. Suivant leur énergie, ils se situent en bordure de bande de valence ou de conduction, et la différence d'énergie entre ces états localisés et les deux bandes feront d'eux des pièges à trous ou à électrons.

Il faut distinguer deux types d'états localisés [16,17]:

- les sites peu profonds, qui sont dus au désordre conformationnel. Ces niveaux d'énergie sont proches des bandes de valence ou de conduction, et les porteurs de charges (électrons et trous) ayant acquis une faible énergie peuvent se mouvoir en « sautant » de site en site.
- les sites profonds, dus au désordre chimique. Ce sont des états isolés dans la bande interdite, dans lesquels les charges peuvent se piéger durablement. Ces niveaux d'énergie sont appelés pièges profonds, et ils participent peu au transport de charges.

Une représentation schématique d'un diagramme d'énergie appliqué aux polymères est donnée à la Figure 2.



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

Les modèles basés sur la mécanique quantique ont permis de nombreuses avancées sur la connaissance des états localisés dans la bande interdite, augmentant ainsi la compréhension des phénomènes physiques à l'origine de la génération et du transport de charges. Ces modèles ont presque tous été développés pour du polyéthylène, matériau le plus simple par sa structure chimique. Meunier et Quirke ont été les premiers à calculer les niveaux d'énergies, i.e. pièges, associés à différentes espèces chimiques présentes dans le PE réticulé (XLPE) [17,18]. Ces 5 dernières années ont permis une évolution rapide de ces techniques, et de nombreux travaux sont maintenant disponibles sur le sujet [19,20,21,22]. On peut notamment citer les résultats de Huzayyin et al [23] et Ramprasad et al [20], qui ont non seulement permis de comprendre la mobilité des trous dans le LDPE, mais ils ont aussi montré que la barrière d'injection entre un métal et le LDPE était réellement de l'ordre de 1 eV du fait des états localisés proches de l'interface. Il est maintenant possible d'avoir accès à ces informations, afin de les utiliser dans les modèles de transport de charges.

## **C.2. MECANISMES DE TRANSPORT DE CHARGES DANS LES ISOLANTS SOLIDES ORGANIQUES**

Dans ce paragraphe, nous traitons des mécanismes physiques de base qui s'appliquent au transport de charges à l'échelle microscopique. Les processus sont largement connus mais ces rappels permettront de mieux comprendre les phénomènes entrant en jeu, et ainsi d'asseoir les hypothèses physiques sur lesquelles reposent les modèles de transport développés par la suite.

Il faut distinguer deux types de porteurs de charges participant à l'établissement d'un courant dans un diélectrique : les charges électroniques, qui englobent les électrons et les trous, et les ions.

### C.2.a) Génération de porteurs électroniques

Les porteurs peuvent avoir différentes origines. Ils sont dits intrinsèques s'ils sont générés à l'intérieur du matériau, et extrinsèques s'ils proviennent de l'extérieur. La génération intrinsèque de charges électroniques dans les isolants solides est peu connue, car il est difficile d'accéder à des phénomènes se passant ponctuellement à une échelle microscopique. Cependant, certains mécanismes de génération semblent privilégiés, comme la dissociation due à des radiations naturelles (cosmiques [24], radioactives, UV), et plus encore à l'activation thermique. En effet, lorsque une charge électrique a acquis suffisamment d'énergie (thermique), elle peut quitter l'environnement électronique auquel elle appartenait, créant ainsi une charge libre. Lors de ces dissociations, des ions peuvent aussi être créés.

Les mécanismes de génération de charges aux interfaces sont plus connus, et sont eux aussi basés sur des solides cristallins. De nombreuses études [4,5,25] menées à ce sujet ont permis de décrire en partie ces processus liés à l'injection de charges électroniques, notamment à une interface métal/isolant.

La hauteur de barrière  $\phi$  séparant le niveau de Fermi du métal et la bande de conduction du diélectrique est fonction des conditions locales aux interfaces, du polymère et du métal pris

en compte. Elle diffère de la fonction de travail de sortie du métal (passage d'un électron du niveau de Fermi du métal dans le vide) par l'affinité électronique du diélectrique. Cette énergie représente l'énergie minimale que doit acquérir une charge pour sortir du niveau de Fermi du métal et franchir la barrière. Deux mécanismes de franchissement de la barrière sont décrits dans ce qui suit : l'effet Schottky et l'effet Fowler-Nordheim.

### 1. Injection de type Schottky

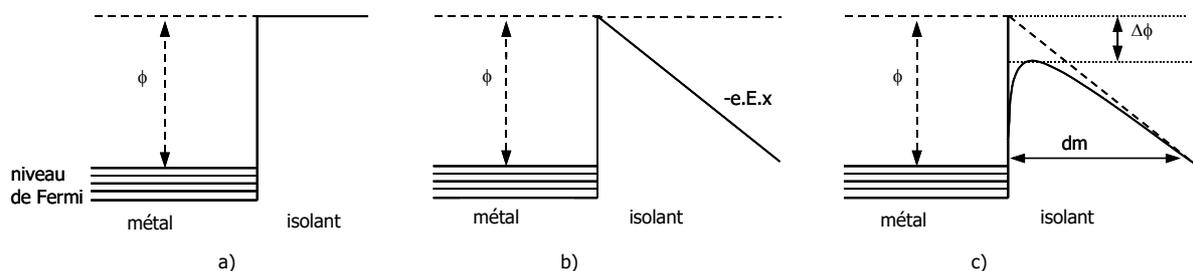
Un électron qui quitte le métal induit une charge positive à la surface de ce métal. La génération de charges dans le diélectrique par effet Schottky tient compte de l'attraction électrostatique de l'électron dans l'isolant avec sa charge image dans le métal. La combinaison de cette charge image avec l'application d'un champ électrique diminue l'énergie potentielle, dont l'expression devient (Figure 3) :

$$U(x) = -eE x - \frac{e^2}{16\pi\epsilon_0\epsilon_r x^2} \quad \text{E 1}$$

où  $e$  est la charge élémentaire,  $E$  le champ électrique appliqué, en faisant l'hypothèse que ce champ soit homogène dans la zone d'interface,  $x$  la variable d'espace, et  $\epsilon$  la permittivité. La hauteur de barrière est donc minorée de:  $\Delta\phi = \left(\frac{e^3 E}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r}\right)^{1/2}$ . La densité de courant d'injection  $j$  tenant compte de cette diminution de barrière de potentiel est donnée par [5,6]:

$$j_{\text{Schottky}} = AT^2 \exp\left(\frac{-ew}{k_B T}\right) \exp\left(\frac{e}{k_B T} \sqrt{\frac{eE}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r}}\right) \quad \text{E 2}$$

où  $w = F - DF$  est la barrière d'injection,  $A$  est la constante de Richardson-Dushman ( $1.2 \cdot 10^6 \text{ A.m}^{-2}.\text{K}^{-2}$ ),  $T$  est la température, et  $k_B$  la constante de Boltzmann ( $1.3806 \cdot 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$ ).



**Figure 3.** Diagramme d'énergie potentielle à une interface métal/isolant électrique: a) en absence de champ électrique, b) lors de l'application d'un champ électrique, et c) en tenant compte de la charge image.

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.

## 2. Injection de type Fowler-Nordheim

L'injection par effet de champ, aussi appelée Fowler-Nordheim [25] est liée à la théorie quantique. 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 permet 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 ( $10^9 \text{ V} \cdot \text{m}^{-1}$ ), dans ce cas l'épaisseur de la barrière de potentiel (dm) est très fine (Figure 3.c.).

$$j_{\text{Fowler}} = \frac{e^3 E^2}{8\pi h \phi} \exp \left[ -\frac{8\pi}{3h} \left( \frac{\sqrt{2m^*} \phi^{3/2}}{eE} \right) \right] \quad \text{E 3}$$

où  $h$  est la constante de Planck ( $6.6261 \cdot 10^{-34} \text{ J}\cdot\text{s}$ ),  $m$  est la masse d'un électron ( $9.11 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$ ).

L'équation E.3 est indépendante de la température, et dépend principalement du champ électrique. Cependant, des études ont montré [26] que l'effet tunnel était aussi fonction de la température. Ainsi, lors de l'augmentation de température, des électrons se trouvant dans un état excité dans le métal ont une probabilité plus grande de passer dans la bande de conduction du diélectrique par effet tunnel. La densité de courant d'injection par effet tunnel sera donc plus grande pour des températures plus élevées.

D'autres types d'injection existent dans la littérature, comme le Trap Assisted Tunneling par exemple, qui correspond à une injection de type tunnel dans des pièges du diélectrique [27,28], qui est notamment utilisé pour la modélisation des capacités MEMS avec des isolants inorganiques. Cependant, peu de choses ont été publiées sur le sujet pour les polymères.

## 3. Limite de validité de ces théories

Les injections de type Schottky ou de type Fowler-Nordheim sont basées sur des matériaux isolants électriques 'parfaits', qui sont exempts de pièges et de charges. Or, il existe des pièges (à électrons ou à trous) au sein de ces matériaux polymères [17]. C'est d'autant plus vrai lorsqu'on se trouve à une interface physique, où la densité de pièges ainsi que leur profondeur doit être exacerbée par rapport au volume du matériau [23,29]. Ainsi, l'injection de Schottky, qui tient compte du passage d'un électron du niveau de Fermi du métal dans la bande de conduction de l'isolant, ne peut réellement s'appliquer avec des valeurs de barrière d'injection réelles. Si on prend l'exemple d'une interface or/LDPE, on arrive à une hauteur de barrière de l'ordre de 5 eV, ce qui, appliqué à la loi d'injection de Schottky, donne un courant d'injection dérisoire qui ne permet pas de rendre compte de la densité de charges réellement injectée aux électrodes [31]. De nombreux travaux, notamment dans les semi-conducteurs

organiques, ont montré que l'injection de charges d'un métal dans le matériau organique ne se faisait pas depuis le niveau de Fermi du métal dans la bande de conduction du matériau organique, mais plutôt dans des états localisés dans la bande interdite [32,33]. De plus, en ce qui concerne l'injection de type Schottky, la théorie ne tient pas compte du fait que le contact peut être à l'équilibre thermodynamique même lorsqu'il n'y a pas de champ appliqué. En effet, lorsqu'un contact est à l'état thermodynamique, cela signifie qu'il y a toujours des échanges, mais que la résultante est nulle. Ainsi, s'il existe bien un courant de Schottky du à l'effet thermique, il existe aussi un contre-courant, depuis le matériau vers l'électrode, qui est égal au courant de Schottky mais de signe opposé. Ce mécanisme est déjà pris en compte dans les semi-conducteurs, par le biais d'une recombinaison des charges avec leur image dans le métal [34]. Ainsi, même si des théories existent sur la génération de charges par injection aux électrodes, elles semblent loin de rendre compte de ce qui se passe réellement à une interface métal/isolant organique.

### C.2.b) Mécanismes de transport de charges électroniques

La conduction résulte du mouvement de porteurs de charges sous l'effet d'un champ appliqué. Elle est souvent fonction de l'épaisseur du diélectrique. Nous nous intéresserons ici uniquement aux théories qui prennent en compte les mécanismes liés à la microstructure du matériau, et non aux mécanismes traduisant des phénomènes macroscopiques. Je veux ici mettre en avant les lois existantes au niveau plus microscopique, afin de pouvoir m'en servir plus tard lors de la description des différents modèles de transport de charges.

#### 1. Conduction par saut - "hopping"

La structure de bande décrite précédemment pour des polymères isolants montre qu'il existe plutôt une distribution de pièges du niveau de Fermi jusqu'aux bandes de valence et de conduction, donnant lieu respectivement à des pièges à électrons et à trous. Les porteurs de charges, présents dans le diélectrique ne se trouvent pas dans la bande de conduction (respectivement la bande de valence), mais plutôt dans des pièges plus ou moins profonds. Le transport ne peut donc pas se faire aussi facilement que s'ils se trouvaient proches de la bande de conduction (de valence), où les pièges se chevauchent et où il est facile pour une charge de passer de site en site.

Les pièges plus profonds se comportent comme des puits de potentiel, dans lesquels les charges sont attirées et restent pour une durée dépendante du niveau d'énergie du piège [18]. Lorsque les charges ont acquis une énergie suffisante pour franchir la barrière de potentiel, elles sont « libérées » pour se repiéger immédiatement dans un piège voisin de même niveau énergétique. Cette énergie de dépiégeage leur est fournie par les vibrations du réseau. La conduction, thermo-activée, se fait donc par saut de piège en piège, ce mécanisme étant plus communément appelé hopping. Cependant, la conduction de type hopping par dessus une barrière de potentiel n'est pas envisageable comme seul mécanisme de conduction, celui-ci n'étant pas compétitif lorsque la barrière devient trop grande. Les charges piégées peuvent aussi passer dans un piège voisin de même énergie

par effet tunnel, analogue à l'injection de type Fowler-Nordheim. Là aussi, cet effet peut avoir lieu à des températures proches de  $T=0K$ , où la distance entre pièges est faible et où l'agitation thermique le permet, mais n'est pas un mécanisme compétitif à plus haute température. Ainsi, le mécanisme le plus probable est une combinaison entre de la conduction par hopping et de la conduction par effet tunnel. Ainsi, un électron est activé thermiquement jusqu'à un niveau d'énergie, et il peut ensuite passer par effet tunnel de ce niveau d'énergie à un site voisin au même niveau d'énergie. Il n'y a pas de passage par dessus la barrière de piégeage dans la bande de conduction (valence).

L'expression du courant pour une conduction par saut est de la forme [6,35]:

$$j_{\text{hop}}(x) = A \exp\left(\frac{-ew_{\text{hop}}}{k_B T}\right) \sinh\left(\frac{eE(x)d}{2k_B T}\right) \quad \text{E 4}$$

avec  $A$  un facteur pré-exponentiel, et  $w$  la barrière d'énergie que la charge doit 'sauter' afin de passer à un site voisin. Il est à noter que cette expression est très voisine de la mobilité ionique.

## 2. Mécanisme de Poole-Frenkel

Le mécanisme de Poole-Frenkel dans le volume est l'analogue de l'injection de Schottky à l'interface métal-isolant. Le transport a lieu par activation thermique, depuis un état donneur (accepteur) dans la bande de conduction (valence), avec une diminution de la barrière de dépiégeage liée au champ électrique. Ainsi, ce type de transport ne peut être effectif que lorsqu'il existe de nombreux états donneurs et/ou accepteurs dans le matériau. Or, l'existence de ces états donneurs et/ou accepteurs n'a pas encore été montrée, notamment dans les isolants solides organiques.

L'expression de la densité de courant résultant de ce phénomène peut être écrite selon [5]:

$$\sigma_{PF}(x) \propto \exp\left(\frac{-e\Delta\Phi_{PF}}{2k_B T}\right) \exp\left(\frac{e}{k_B T} \sqrt{\frac{eE(x)}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r}}\right) \quad \text{E 5}$$

où  $\Delta\Phi_{PF}$  est la hauteur de la barrière.

### C.2.c) Génération de porteurs ioniques

Il est difficile de lister la totalité des ions contenus dans une matrice polymère, et encore moins de connaître leur origine. Cependant, plusieurs pistes semblent converger vers les mêmes mécanismes de génération d'ions.

Des ions, présents dans la chaîne polymère, ou résidus chimiques de la mise en œuvre, existent dans le diélectrique. Ils peuvent provenir de réactions chimiques, comme le soufre présent dans les anti-oxydants, ou des ions organiques (oxalate...) issus de l'oxydation du polymère [36,37]. Le taux d'humidité semble aussi être un facteur important, puisque les molécules d'eau contenues dans l'isolant influent sur le transport des charges électroniques, et semblent aussi intervenir dans l'ionisation des impuretés [38].

D'autre part, l'application d'une tension perturbe l'arrangement électronique de molécules telles que les sels, qui créent des ions par dissociation:



Il en est de même avec toutes les molécules neutres qui peuvent se décomposer en paire cation-anion.

Un mécanisme de génération d'ions moins connu s'opère par diffusion de certains ions des électrodes vers le diélectrique. Ces ions peuvent être d'origine métallique, ou d'origine organique (interface semi-conducteur/diélectrique par exemple) [39,40].

### C.2.d) Transport de charges ioniques

Lors de l'application d'un champ électrique, la neutralité de la matrice est perturbée, et les ions se meuvent en direction des électrodes. Il est indispensable, pour le transport ionique, de tenir compte de la masse et de la taille de ces ions, en comparaison avec celle des électrons et des trous. La mobilité de ces ions est ainsi beaucoup plus faible que la mobilité électronique. Il est difficile de connaître exactement la nature des ions participant à la conduction, surtout lorsque le matériau d'étude est complexe (ou industriel). Ces ions peuvent se piéger dans des puits de potentiel créés par la conformation de la chaîne de polymère. S'ils acquièrent une énergie suffisante pour sortir d'un puits, ils se déplacent le long du squelette carboné pour se repiéger dans un autre puits de potentiel. L'architecture de la chaîne est donc à l'origine de ces puits de potentiel.

La densité de courant résultant de la conduction ionique est de la forme [6] :

$$j_{\text{ion}}(x) = 2n_{\text{ion}}d\nu_0 \exp\left(\frac{-e\Delta G}{k_B T}\right) \sinh\left(\frac{eE(x)d}{2k_B T}\right) \quad \text{E 6}$$

où  $n_{\text{ion}}$  la densité d'ions,  $d$  la distance inter-site et  $\Delta G$  est l'énergie libre de Gibbs.

## D. MODELES FLUIDES

L'approche de la modélisation du transport de charges pour des états non stationnaires avec prise en compte de la charge d'espace s'est développée depuis la fin des années 1990. Avant cela, seuls des modèles stationnaires ou des modèles reproduisant des transitoires de courants étaient disponibles, tenant compte de diverses hypothèses physiques (SCLC majoritairement, avec un seul type de charges [41], transport ionique [42]...). La majorité des modèles de transport de charges disponibles dans la littérature sont des modèles fluides, i.e. les porteurs sont représentés comme des fluides et sont caractérisés par des grandeurs macroscopiques (densités, flux, potentiels ...). C'est pour cela qu'on appelle aussi ces modèles des modèles fluides macroscopiques, par comparaison aux modèles microscopiques, cinétiques, qui traitent les particules de manière individuelle ou quasi individuelle. Cependant, il ne faut pas confondre ces modèles fluides macroscopiques avec des modèles 'macroscopiques' basés sur des données expérimentales et qui traitent majoritairement de la variation de constantes macroscopiques (permittivité, conductivité électrique et/ou thermique) avec le champ électrique et la température. Ainsi, pour mieux les différencier, je continuerai à appeler ces derniers des modèles macroscopiques, alors que les modèles de transport de charges seront appelés des modèles fluides.

Les modèles fluides, qu'ils soient développés pour des solides, des liquides, des gaz, et quelles que soient les hypothèses physiques, reposent tous sur les équations générales suivantes, pour un modèle mono-dimensionnel:

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} + \frac{\partial(n_i \mu_i E)}{\partial x} - \frac{\partial}{\partial x} \left( D_i \frac{\partial n_i}{\partial x} \right) = S_i \quad \text{E 7}$$

$$\frac{\partial E}{\partial x} = \frac{\rho}{\epsilon_0 \epsilon_r} \quad \text{E 8}$$

où  $n_i$  est la densité de l'espèce  $i$ ,  $t$  le temps,  $e$  la charge élémentaire,  $\mu_i$  la mobilité,  $D_i$  le coefficient de diffusion,  $s_i$  le terme source de l'espèce considérée, et  $E$  est le champ électrique.  $\rho$  est la densité nette de charges,  $\epsilon_0$  la permittivité du vide et  $\epsilon_r$  la permittivité relative du matériau (considérée comme constante dans ce cas précis). Bien sûr, toutes ces variables sont fonction de l'espace et du temps, mais l'équation E7 ne le met pas en avant. Cette équation est aussi fonction de l'espèce considérée (charge positive, négative, mobile, piégée). L'équation E7 peut être appelée équation de continuité, équation de transport ou d'advection-diffusion (parfois convection-diffusion) selon le domaine scientifique.

L'équation E8 est quant à elle l'équation de Poisson, qui est un cas particulier de l'équation de Maxwell/Gauss.

La difficulté vient ensuite de la prise en compte d'hypothèses physiques spécifiques, qui impactent par exemple le nombre d'espèces à prendre en compte, la mobilité des charges ou encore les termes sources non nuls.

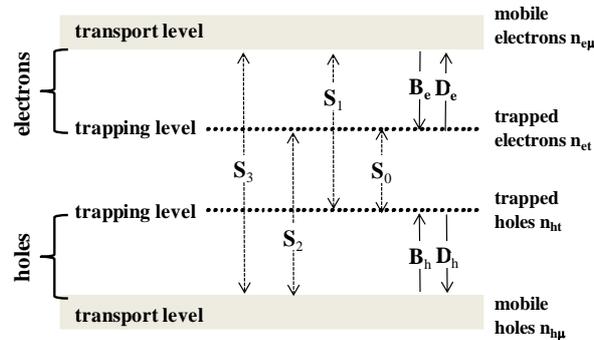
Par la suite, j'expose en détail les 2 principaux modèles qui ont été développés dans l'équipe, ainsi que les autres modèles (fluides et non fluides) qui sont disponibles dans la littérature sur les isolants organiques solides. La dernière partie de ce chapitre concerne le développement numérique des modèles, dont je ne parlerai que brièvement, mais qui reste essentiel dans le développement des modèles fluides.

### **D.1. MODELES FLUIDES A DEUX NIVEAUX DE PIEGES**

Le premier modèle, simple, est basé sur les travaux de Alison et Hill [43], ainsi que sur ceux de Fukuma et al [44], et Kaneko et al [45], publiés dans la même période. Le modèle ainsi développé est un modèle unidimensionnel, fonction de l'épaisseur du diélectrique (Figure 4). Le modèle repose sur des observations expérimentales de mesures de charges d'espace notamment, qui ont permis de mettre en évidence le caractère bipolaire du transport de charges dans les matériaux de type polyéthylène. Le modèle est donc bipolaire, il tient compte de la génération et du transport de charges électroniques positives (trous) et négatives (électrons). Chaque charge (électron et trou) peut être mobile ou piégée. Un électron mobile dans la bande de conduction (trou mobile dans la bande de valence) est associé à une mobilité effective. Celle-ci décrit les phénomènes microscopiques de conduction dans la bande de valence (trous) et dans la bande de conduction (électrons). Elle tient aussi compte du possible piégeage et dépiégeage des charges dans des pièges peu profonds, dans lesquels le temps de résidence est court ( $10^{-12}$  s). Cette valeur de mobilité est donc faible par rapport à une mobilité de bande. Le piégeage est pris en compte en ne considérant qu'un seul niveau de piégeage profond pour chaque espèce de charges. Cette démarche se justifie sur la base des résultats de Quirke [17]. Le piégeage est fonction des coefficients de piégeage  $B_e$  et  $B_h$  pour chaque porteur de charge, de la densité de charges disponible pour le piégeage, ainsi que de la quantité de charges déjà piégées. Il existe une densité maximale de charges qui peut être piégée (densités de pièges  $n_{0et}$  pour les électrons et  $n_{0ht}$  pour les trous). La profondeur de ces pièges est de l'ordre de 1 eV, ce qui est cohérent par rapport aux calculs effectués par Meunier et al [17] pour du désordre chimique, i.e. des pièges profonds dans le polyéthylène. Une fois la charge piégée, celle-ci peut se dépiéger par activation thermique. Les charges piégées peuvent aussi se recombiner avec un porteur de charge de signe opposé, mobile ou piégé. La recombinaison des porteurs se fait sans créer de nouvelle espèce, même neutre, dans le diélectrique. En terme de modélisation cela revient à réduire la charge nette. Après recombinaison, le piège est libéré et le piégeage redevient donc possible. La génération de charges électroniques est dominée par l'injection aux électrodes. Celle-ci, à la différence du modèle d'Alison et Hill (qui s'appuie sur un réservoir infini de charges aux électrodes), est décrite en terme de modélisation par la loi d'injection de Schottky, ce qui semble raisonnable compte tenu des résultats de la littérature [6,46]. C'est du moins l'hypothèse que nous ferons dans un premier temps. D'autre part, les mesures expérimentales de charge d'espace dans du polyéthylène basse densité (LDPE) ne montrent pas d'accumulation d'hétérocharges, liées à la difficulté d'extraction des porteurs injectés après transit à travers l'épaisseur du diélectrique. Le modèle ne tiendra pas compte de barrières d'extraction.

Au cours d'une première approche, nous avons négligé les phénomènes de diffusion et de polarisation des dipôles et nous avons concentré nos efforts sur les termes du transport.

Les sorties du modèle sont nombreuses: densités de porteurs libres et piégés en fonction du temps et de l'espace, profils de charge nette et de champ, de courant externe, taux de recombinaison, potentiel de surface... Ces sorties du modèle ont pour objectif d'être directement comparables à des grandeurs mesurables expérimentalement.



**Figure 4.** Représentation schématique du modèle de transport de charges à deux niveaux de pièges.

Le système d'équations à résoudre est le même que celui donné aux équations E7 et E8, en négligeant la diffusion, et en considérant la permittivité constante. Ainsi, l'équation de Poisson peut s'écrire:

$$\frac{\partial E(x,t)}{\partial x} = \frac{\rho(x,t)}{\epsilon_0 \epsilon_r} \quad \text{E 9}$$

où  $E(x,t)$  est le champ électrique, fonction de l'épaisseur du diélectrique,  $\rho(x,t)$  est la densité nette de charges, en  $C.m^{-3}$ . La densité nette de charges peut être calculée à l'aide des densités de charges positives et négatives:

$$\rho(x,t) = |e|(-n_{e\mu}(x,t) - n_{et}(x,t) + n_{h\mu}(x,t) + n_{ht}(x,t)) \quad \text{E 10}$$

avec  $e$  la charge élémentaire, et  $n_{e\mu}$ ,  $n_{et}$ ,  $n_{h\mu}$  et  $n_{ht}$  les densités de particules ( $m^{-3}$ ) pour les électrons libres, les électrons piégés, les trous libres et les trous piégés respectivement.

L'équation de continuité s'écrit de la manière suivante, en négligeant la diffusion:

$$\frac{\partial n_a(x,t)}{\partial t} + \frac{1}{e} \frac{\partial j_a(x,t)}{\partial x} = s_a(x,t) \quad \text{E 11}$$

où  $n_a$  représente la densité de particules pour chaque espèce (électrons libres, électrons piégés, trous libres et trous piégés),  $t$  est le temps, et  $s_a$  sont les termes sources.  $j_a$  est le flux

de particules ( $A.m^{-2}$ ), pour chaque espèce mobile, et est de la forme, en négligeant la diffusion:

$$j_a(x, t) = \pm en_{a\mu}(x, t)\mu_a(x, t)E(x, t) \quad E 12$$

$\mu_a$  est la mobilité de chaque espèce, et est constante.

Le terme  $s_a$  représente le terme source, qui traduit l'apparition et la disparition de charges non liées au transport. Cette variation est due dans le cas de ce modèle au piégeage, au dépiégeage et à la recombinaison.

Le terme source dans le cas des électrons libres s'écrit de la manière suivante :

$$s_{e\mu}(x, t) = -S_1 n_{e\mu} n_{ht} - S_3 n_{e\mu} n_{h\mu} - B_e n_{e\mu} \left(1 - \frac{n_{et}}{n_{oet}}\right) + n_{et} \nu \exp\left(\frac{-eW_{detr}}{k_B T}\right) \quad E 13$$

avec  $S_1$  le coefficient de recombinaison entre les électrons libres et les trous libres et  $S_3$  celui entre les électrons libres et les trous piégés.  $B_e$  est le coefficient de piégeage pour les électrons libres, et  $n_{oet}$  est la densité maximale de pièges. Le signe moins signifie qu'on a une disparition d'électrons libres due à ces deux mécanismes. Au contraire, on a une apparition d'électrons libres due au dépiégeage des électrons piégés, qui est le dernier terme de l'équation E13. Le même type d'équation est valable pour chaque espèce libre et piégée.

Contrairement à l'approche d'Alison et Hill où un réservoir de charges est pris en compte à l'interface [43], nous avons choisi d'exprimer l'injection aux électrodes en terme d'injection de Schottky, qui est de la forme, pour les trous à la position L:

$$j_{inj-Schot}(L, t) = AT^2 \exp\left(\frac{-eW_{hi}}{k_B T}\right) \exp\left(\frac{e}{k_B T} \sqrt{\frac{eE(L,t)}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r}}\right) \quad E 14$$

où  $E(L,t)$  est le champ électrique à l'électrode, et  $W_{hi}$  est la barrière d'injection pour les trous.

Ce modèle est simple d'utilisation, car les paramètres du modèle sont indépendants. Ces paramètres sont cependant difficiles à appréhender, et mis à part les barrières d'injection, de dépiégeage qui peuvent être approchées par des simulations ab initio, et dans une certaine mesure la mobilité à l'aide des mesures de charges d'espace, les autres paramètres doivent être déduits indirectement.

Ce modèle, développé en 2004 dans notre équipe [P- 1], et validé pour du polyéthylène basse densité [P- 4], est largement repris dans la littérature, et est notamment appliqué à des matériaux polyéthylène [47,48,49], à des PE chargés [50,51,52], à des interfaces PE/gaz [53], ou à d'autres matériaux isolants organiques [54].

Nous présenterons quelques résultats obtenus grâce à ce modèle, ainsi que ses évolutions, dans les chapitres suivants.

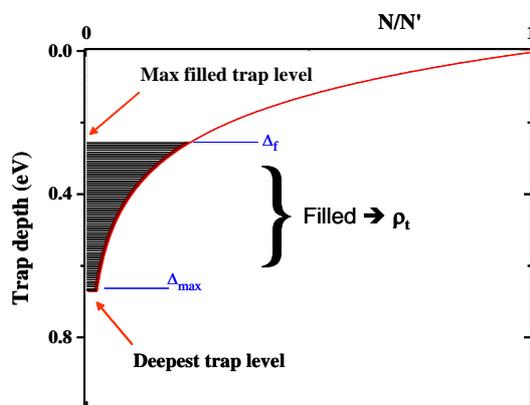
## D.2. MODELE FLUIDE A DISTRIBUTION EXPONENTIELLE DE PIEGES

Un deuxième modèle de transport de charges, lui aussi unidimensionnel et bipolaire, a été développé au sein de l'équipe, dans le cadre de la thèse de F. Boufayed et de mon post-doctorat à Leicester (U.K.), tous deux financés par le projet européen du 5ème PCRDT: 'Benefits of HVDC links in the European power electrical system and improved HVDC technology (HVDC)'. Ce modèle prend en compte la structure microscopique du matériau grâce à une distribution exponentielle d'états d'énergie pour chaque type de porteur, et un niveau maximal de profondeur de pièges [P- 6]. On considère que les pièges sont remplis à partir du niveau inoccupé le plus bas. La mobilité des porteurs de charges est de type 'hopping' et tient compte de la densité de charges déjà présente dans les pièges. La génération de charges se fait uniquement par injection aux électrodes par l'équation de Schottky modifiée. Par simplification, la génération interne de charges et la recombinaison ont été négligées. Par rapport au modèle précédent, le terme source de l'équation E11 est nul.

La distribution exponentielle de pièges, présentée à la Figure 5, s'exprime en fonction de la profondeur  $\Delta$  par :

$$N_{t(e,h)}(\Delta_{e,h}) = N'_{e,h} \exp\left(-\frac{\Delta_{e,h}}{k_B T_0}\right) \quad \text{E 15}$$

où  $N_{t(e)}$  et  $N_{t(h)}$  ( $\text{m}^{-3}\text{J}^{-1}$ ) sont les distributions des densités de pièges pour les électrons et les trous, caractérisées par le paramètre relatif à la forme de la fonction de distribution  $T_0$  et le facteur pré exponentiel  $N'$ . Nous avons considéré les estimations de densité de pièges réalisées par Quirke et al [18] par modélisation moléculaire afin d'avoir une idée des valeurs des paramètres  $N$ , et  $T_0$ .



**Figure 5.** Représentation schématique de la distribution exponentielle de pièges pour un seul type de porteur.  $\Delta_f$  définit le niveau occupé le plus haut et  $\Delta_{\text{max}}$  la profondeur maximale de pièges.

Le transport de charge à travers l'isolant est supposé contrôlé par un mécanisme de hopping [55]. L'équation de la mobilité pour un type de porteur est de la forme :

$$\mu_{hop}(x, t) = \frac{2vd}{E} \exp\left(\frac{-e\Delta_f(x,t)}{k_B T}\right) \sinh\left(\frac{eE(x,t)d}{2k_B T}\right) \quad E 16$$

où  $\nu$  est la fréquence des sauts fixée par  $\frac{k_B T}{h} = 6.2 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1}$ ,  $d$  est la distance moyenne entre les pièges, et  $\Delta_f$  définit le niveau occupé le plus haut, pour chaque type de porteur.

Les pièges sont remplis du niveau d'énergie le plus bas vers le niveau le plus haut. Avec une distribution exponentielle des pièges, la densité totale de charges piégées pour un seul type de porteur est :

$$\rho_t = \int_{\Delta_f}^{\Delta_{fmax}} eN' \exp\left(-\frac{\Delta}{k_B T_0}\right) d\Delta = eN' k_B T_0 \left[ -\exp\left(-\frac{\Delta_f}{k_B T_0}\right) - \exp\left(-\frac{\Delta_{fmax}}{k_B T_0}\right) \right] \quad E 17$$

avec  $\rho_t$  la densité totale de charges, dépendante du temps et de l'espace.

En considérant que seule la fraction  $\rho_f$  de charges piégées, ayant une énergie comprise entre  $\Delta_f$  et  $\Delta_f - kT$ , contribue au transport [55], nous obtenons la relation suivante :

$$\rho_f = \frac{\rho_t}{1+a} \quad \text{avec } a = \frac{T_0}{T} \quad E 18$$

En combinant les relations entre  $\rho_t$  et  $\Delta_f$ , l'équation de la mobilité devient pour chaque type de porteurs:

$$\mu(x, t) = \frac{2vd}{E} \left[ \frac{\rho_t(x,t)}{eN' k T_0} + \exp\left(\frac{-e\Delta_{max}}{k_B T_0}\right) \right]^a \sinh\left(\frac{eE(x)d}{2k_B T}\right) \quad E 19$$

Le système d'équations à résoudre est le même que celui décrit dans le modèle précédent (E7 et E8), avec un terme source nul dans l'équation de continuité.

Contrairement au modèle à deux niveaux de pièges, ce modèle est beaucoup plus 'physique', puisqu'il se base sur une distribution plus réelle des pièges. Cependant, ce modèle est beaucoup plus compliqué à utiliser, tous les paramètres étant liés (mobilité fonction de la densité de charges, de la température et du champ électrique). De plus, même si on peut s'appuyer sur de la modélisation ab initio pour avoir une idée des valeurs de paramètres, ceux-ci restent quand même à adapter. Je montrerai dans le chapitre suivant quelques résultats obtenus avec ce modèle.

### **D.3. AUTRES TYPES DE MODELES RENCONTRES DANS LA LITTERATURE**

D'autres types de modèles existent dans la littérature, qui ne sont pas des modèles fluides, et qui permettent de décrire le comportement du matériau isolant électrique solide sous contrainte. Dans la partie introductive, les modèles ab-initio ont été abordés, qui permettent d'obtenir des informations sur les 'données de base', que sont par exemple les états localisés dans la bande interdite [17,20,23], des barrières d'injection entre différents matériaux [21,29], et qui vont maintenant même jusqu'à des prédictions de mobilités ou de transport dans ce type de matériau [19,22,30].

Les modèles cinétiques sont peu développés dans les matériaux solides organiques, mais sont largement utilisés dans la physique des plasmas [56,57]. On peut cependant noter la tentative de Lean and Chu [58,59], qui ont développé un modèle cinétique, de type Particle-in-Cell - PIC, prenant en compte la génération de charges, le transport, le piégeage, et la recombinaison dans des isolants solides organiques. Ce modèle a été utilisé pour modéliser le comportement de matériaux composites, majoritairement nano-composites [58]. Ces mêmes auteurs ont même développé ce modèle en 3D [59]. Ce type de modélisation est basé sur la résolution des équations de mouvement, et permet de suivre la totalité des particules générées, et de coupler avec du Monte-Carlo pour simuler la recombinaison aléatoire entre différents types de particules. Cependant, il est à noter que i/les questions qui se posent pour les modèles fluides (quel type d'injection, comment modéliser la mobilité des charges..) se posent de la même manière dans ce type de modèles, et ii/ le temps de calcul est très long et nécessite une puissance de calcul énorme par rapport à des modèles fluides.

Un autre type de modèle rencontré dans la littérature pour les isolants électriques solides sont les modèles dits macroscopiques, i.e. qui se basent sur la variation de la conductivité du/des matériaux en fonction de la contrainte électrique et/ou thermique afin d'obtenir des résultats tels que la distribution en champ électrique, ou la densité de charges. Ce type de modèle a été développé avant tout pour des géométries complexes et multimatériaux, où ces contraintes ne sont pas homogènes (câbles de transport d'électricité par exemple). Ces modèles ont été développés en premier lieu par Lau [60] et repris par de nombreux auteurs [61,62,63].

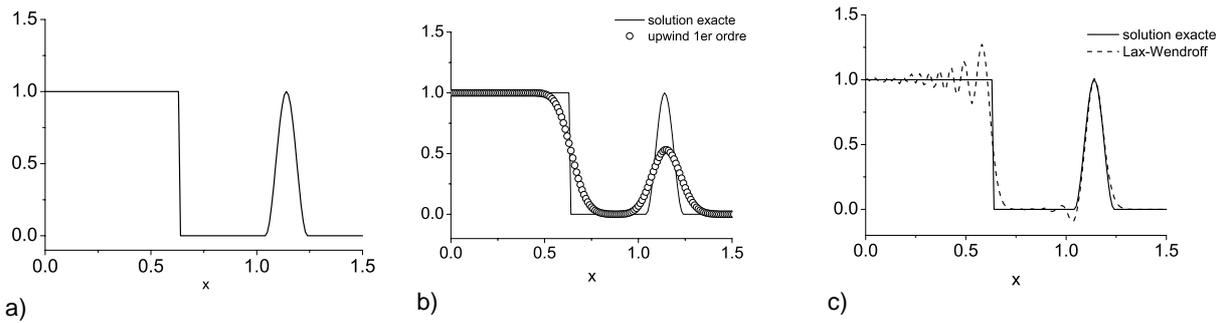
Ce type de modèle est aussi développé dans notre équipe, notamment lors des travaux de thèse de T.T.N. Vu [P- 18,P- 20,P- 25], et a montré la pertinence des résultats comparés à des mesures, notamment pour des multicouches plan ou câble. Je parlerai par la suite

uniquement des résultats de ces modèles, sans en décrire plus le développement numérique.

#### **D.4. UN MOT SUR LES SCHEMAS NUMERIQUES**

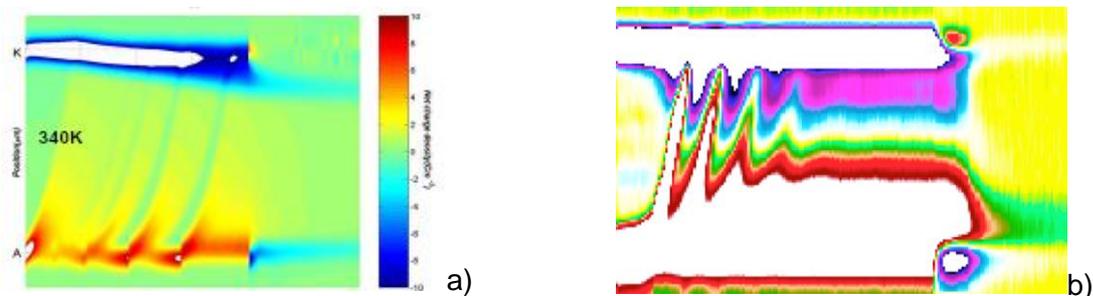
Les deux modèles décrits ci-dessus ont été développés grâce à des codes 'maison' utilisant des volumes finis. Chaque équation est approchée par des schémas numériques, qui permettent de calculer les variables sur les éléments de la grille de discrétisation ('découpage' de l'épaisseur de l'échantillon en cellule uniformes ou non uniformes). Le défi de tout développement numérique est d'arriver à utiliser les meilleurs algorithmes capables de résoudre les équations physiques. En effet, chaque schéma numérique peut introduire de la diffusion numérique (on lisse les résultats) et/ou des oscillations dans les résultats, et ceux-ci peuvent se retrouver complètement faussés uniquement par le choix de l'algorithme. Ceci est vrai quel que soit le mode de développement, pour des codes fait maison ou pour des logiciels commerciaux. Il faut donc être capable d'évaluer l'erreur commise lors de la résolution numérique des équations. Dans la qualité de l'algorithme, on tiendra également compte de son efficacité en terme de temps de calcul, car plus un algorithme est complexe, plus il prend de temps CPU. Il faut cependant aussi garder à l'esprit que les modèles développés ici sont directement comparés à des expériences, et que celles-ci ont une précision parfois beaucoup plus faible que l'erreur qui est faite lors du choix des schémas numériques. Il ne faut donc pas toujours chercher l'erreur minimale au risque de se perdre dans la complexité des schémas numériques et dans la longueur du temps de calcul.

Une des équations les plus difficiles à résoudre est l'équation d'advection. Les publications portant sur la mise en œuvre d'algorithmes de résolution de l'équation d'advection sont nombreuses [64,65,66,67]. En effet, un mauvais choix de l'algorithme entraîne la non conservation des solutions. Dans le but de montrer l'effet des schémas numériques sur les résultats d'un problème quelconque, j'ai choisi deux caractéristiques de comportement de la densité de charges, qui, par leur forme, constituent des cas critiques à résoudre numériquement. Le premier profil est un palier unité de densité de charges, dont la variation entre 1 et 0 s'effectue en un seul pas dans l'espace. Le second profil est une onde en sinus carré. Les caractéristiques initiales sont ensuite translatées à vitesse constante, pour obtenir les solutions 'exactes' (Figure 6a). Les résultats obtenus à la Figure 6b) pour un schéma diffusif ('upwind') montrent un lissage des fronts raides, avec cependant respect de la positivité des résultats. La Figure 6c) au contraire montre des résultats relativement proches des résultats exacts, avec des valeurs maximales correctes. Cependant, on observe des oscillations aux inflexions les plus raides, ce qui conduit à des valeurs négatives. Ce type de résultat est d'autant plus préoccupant que les modèles de transport de charges sont bipolaires, i.e. on simule des charges positives et négatives. Ainsi, il est parfois difficile de faire la différence entre des résultats justes et des résultats faux dus à un mauvais schéma numérique.



**Figure 6.** a) Solution exacte, b) résultats obtenus en utilisant un schéma numérique du premier ordre diffusif (Upwind), et c) résultats obtenus en utilisant un schéma numérique du second ordre (Lax-Wendroff).

L'exemple ci-après n'est pas directement lié aux schémas numériques mais à un manque de contrôle sur les conditions de calcul du pas de temps. En effet, le pas de temps est directement lié aux phénomènes physiques qui ont été pris en compte dans le modèle et qui ont lieu dans chaque cellule de discrétisation. Dans les modèles décrits ci-dessus, le pas de temps respecte le critère de Courant-Friedrichs-Lewy, c'est à dire que le déplacement d'une charge pendant un temps  $dt$  ne doit pas dépasser la taille d'un élément  $dx$ . Le pas de temps est aussi calculé pour être plus petit que le temps de relaxation du plus rapide des phénomènes (piégeage, recombinaison), et ce dans chaque cellule. Cependant, l'injection de charges ne rentrait pas dans le calcul du pas de temps. Pour pallier cet oubli, un critère restrictif avait plutôt été fixé sur le champ électrique aux électrodes, qui devait tendre vers zéro mais ne jamais changer de signe lorsqu'une tension était appliquée en DC. Ceci peut se produire lorsqu'on injecte énormément de charges à une électrode (cf loi d'injection de Schottky), alors que le champ électrique est déjà faible. Ces deux problèmes entraînent pour des cas particuliers les résultats de simulation présentés à la Figure 7a). Ces résultats de simulation font largement penser à des paquets de charges, observés expérimentalement (cf Figure 7b) [68]) et dont les mécanismes physiques sont encore peu connus. Malheureusement, les résultats de simulation sont parfaitement faux. Ceci reste un exemple qui n'a jamais été publié et qui est arrivé alors que les modèles ont été développés en interne, mais le risque est grand, d'autant plus lorsque les modèles sont développés sur des logiciels commerciaux, qui restent au minimum des boîtes grises.



**Figure 7.** a) Cartographie de charge d'espace obtenus grâce à la simulation, et utilisant une condition restrictive sur l'injection de charges, b) mesure PEA de charge d'espace sur du LDPE sous contrainte électrique de 80 kV/mm à 25°C, montrant la propagation de paquets de charges [68].

## **D.5. OPTIMISATION**

Le but final des modèles de transport de charges est qu'ils soient capables de prédire le comportement des matériaux sous une contrainte électrique quelconque. Avant ce stade, les modèles doivent être validés grâce à des expériences, qui permettent aussi d'affiner les paramètres des modèles qui ne peuvent être trouvés dans la littérature. Cette étape peut se faire manuellement, par tâtonnement afin de trouver les meilleurs paramètres qui 'fittent' les mesures. Cela est cependant laborieux et rébarbatif, et peut s'avérer infini si l'on veut réellement confronter de nombreuses mesures à la simulation. L'optimisation permet, grâce à des algorithmes connus, de minimiser l'erreur entre les résultats expérimentaux et les résultats de simulation. Plus le nombre d'expériences est grand et le type d'expérience divers, plus on a de chances de converger vers un jeu de paramètres. Depuis une dizaine d'année, notre équipe (notamment Fulbert Baudoin) travaille sur le développement d'outils d'optimisation afin d'améliorer cette étape [I- 3,CPI- 19,CPI- 41].

## E. EVALUATION ET EVOLUTIONS DES HYPOTHESES PHYSIQUES DES MODELES

Le développement numérique d'un modèle nécessite trois phases bien distinctes. La première consiste à définir les hypothèses physiques qui s'appliquent dans le cadre de la modélisation. Il faut pour cela disposer d'une bonne connaissance du problème posé, des éléments expérimentaux disponibles, et de l'état de l'art concernant la physique dans le domaine considéré. Il est donc impératif, chaque fois que le comportement d'un nouveau matériau doit être modélisé, de le caractériser expérimentalement. Cependant, lors des expériences, il n'est pas certain de caractériser un seul type de mécanisme physique, mais plusieurs. Le premier challenge est alors de réfléchir à des expériences originales qui permettent de cibler un seul type de processus physique, afin de le caractériser correctement et de l'insérer dans les modèles. La deuxième phase est la mise en équation des hypothèses faites auparavant, et la résolution numérique de chaque équation. La dernière phase est la confrontation des résultats de simulation aux expériences, afin de valider, ou non les hypothèses retenues. Lorsque les résultats théoriques ne donnent pas entière satisfaction, une réflexion sur les hypothèses retenues est nécessaire, afin de vérifier si d'autres processus physiques n'ont pas été oubliés.

Dans ce chapitre, je présente dans un premier temps l'évaluation du modèle à deux niveaux de pièges, grâce à la comparaison des résultats de celui-ci à des mesures expérimentales capables de sonder des processus physiques différents. A l'issue de cette évaluation, les points forts et les points faibles du modèle seront énoncés. Une réflexion sur les processus physiques qu'il faudrait encore améliorer est proposée, ainsi que des processus physiques à ajouter au modèle de transport de charges. Par la suite, je montre pour deux processus physiques (la génération de charges, et les processus polaires) le travail qui a été effectué afin d'arriver à faire évoluer le modèle. Ce travail peut être expérimental ou introduire de nouveaux concepts en terme de modélisation.

### **E.1. EVALUATION DU MODELE A DEUX NIVEAUX DE PIEGES POUR DU LDPE**

Ces résultats de mesures et de simulations ont été obtenus lors de mon travail de thèse, travail effectué en collaboration avec l'entreprise Borealis et l'université de Bologne [69]. C'est aussi sur ces travaux que se basent la plupart des évolutions (en terme d'hypothèses physiques) qui ont été effectuées jusqu'à présent.

Des mesures de charges d'espace par la méthode Electro Acoustique Pulsée -PEA, des mesures de courant et des mesures d'électroluminescence ont été effectuées pour plusieurs protocoles d'application de la tension, DC et AC, afin d'avoir un nombre suffisant d'expériences pour caractériser le matériau à l'étude, le polyéthylène basse densité - LDPE, revendiqué pour être le plus simple des polymères. Les échantillons de LDPE utilisés pour toutes les expériences ont été fournis par l'entreprise BOREALIS [69]. La résine de base (réf. LE 4944) contient des antioxydants, pour palier à la dégradation chimique du matériau au contact de l'oxygène de l'air. Il est à noter que ce matériau est semi-cristallin (taux de cristallinité 40%), et que sa densité est de  $923 \text{ kg.m}^{-3}$ . Un traitement thermique, à  $50^\circ\text{C}$  pendant 48 heures, est appliqué à chaque échantillon avant chaque expérience. Les

échantillons qui ne sont pas utilisés sont conservés dans un dessiccateur, afin d'éviter leur contamination par l'air ambiant ou par d'autres échantillons contenant des produits volatils.

Les mesures ainsi obtenues ont été comparées avec les résultats du modèle à deux niveaux de pièges, présenté dans le chapitre précédent. L'adaptation des paramètres a été réalisée manuellement, et un jeu unique de paramètres a été utilisé pour reproduire la totalité des expériences à disposition. Ce jeu unique de paramètres est présenté dans le Tableau 1.

Je présente par la suite quelques comparaisons entre les résultats de simulation et les mesures, afin de montrer la validation du modèle, et les différentes failles que nous avons aussi pu observer. La totalité des résultats a été publiée dans [P- 4].

| Symbole   | Valeur   | Unité  |
|---|--|--|
| <b>Coefficients de piégeage</b>                           |  |  |
| B <sub>e</sub> électrons                                  | 1.10 <sup>-1</sup>                                     | s <sup>-1</sup>                                  |
| B <sub>h</sub> trous                                      | 2.10 <sup>-1</sup>                                     | s <sup>-1</sup>                                  |
| <b>Coefficients de recombinaison</b>                      |  |  |
| S <sub>0</sub> électrons piégés/ trous piégés             | 6.4 10 <sup>-22</sup>                                  | m <sup>3</sup> . s <sup>-1</sup>                 |
| S <sub>1</sub> électrons libres/trous piégés              | 6.4 10 <sup>-22</sup>                                  | m <sup>3</sup> . s <sup>-1</sup>                 |
| S <sub>2</sub> électrons piégés/trous libres              | 6.4 10 <sup>-22</sup>                                  | m <sup>3</sup> . s <sup>-1</sup>                 |
| S <sub>3</sub> électrons libres/trous libres              | 0  | m <sup>3</sup> . s <sup>-1</sup>                 |
| <b>Mobilité</b>   |  |  |
| Electrons   | 1.10 <sup>-14</sup>                                    | m <sup>2</sup> .V <sup>-1</sup> .s <sup>-1</sup> |
| Trous   | 2.10 <sup>-13</sup>                                    | m <sup>2</sup> .V <sup>-1</sup> .s <sup>-1</sup> |
| <b>Densité maximale de pièges</b>                         |  |  |
| à électrons   | 6.25 10 <sup>20</sup>                                  | m <sup>-3</sup>                                  |
| à trous   | 6.25 10 <sup>20</sup>                                  | m <sup>-3</sup>                                  |
| <b>Hauteur des barrières pour l'injection de Schottky</b> |  |  |
| Electrons   | 1.27   | eV   |
| Trous   | 1.16   | eV   |
| <b>Hauteur des barrières pour le dépiégeage</b>           |  |  |
| Electrons   | 0.96   | eV   |
| Trous   | 0.99   | eV   |
| <b>Densité initiale de charges</b>                        |  |  |
| Electrons   | Variable de<br>3.10 <sup>17</sup> à 6.10 <sup>17</sup> | m <sup>-3</sup>                                  |
| Trous   |  |  |

**Tableau 1.** Valeurs des paramètres du modèle à deux niveaux de pièges après l'étape d'approche des résultats expérimentaux.

### E.1.a) [Mesures sous tension continue en polarisation/dépolarisation](#)

Le protocole expérimental et de simulation consiste à appliquer un champ électrique pendant 3 heures, puis une dépolarisation de 3 heures également. Ce protocole est appliqué pour quatre champs électriques (10, 40, 60 et 80 kV/mm), à température ambiante uniquement.

#### 1. Profils de charge d'espace

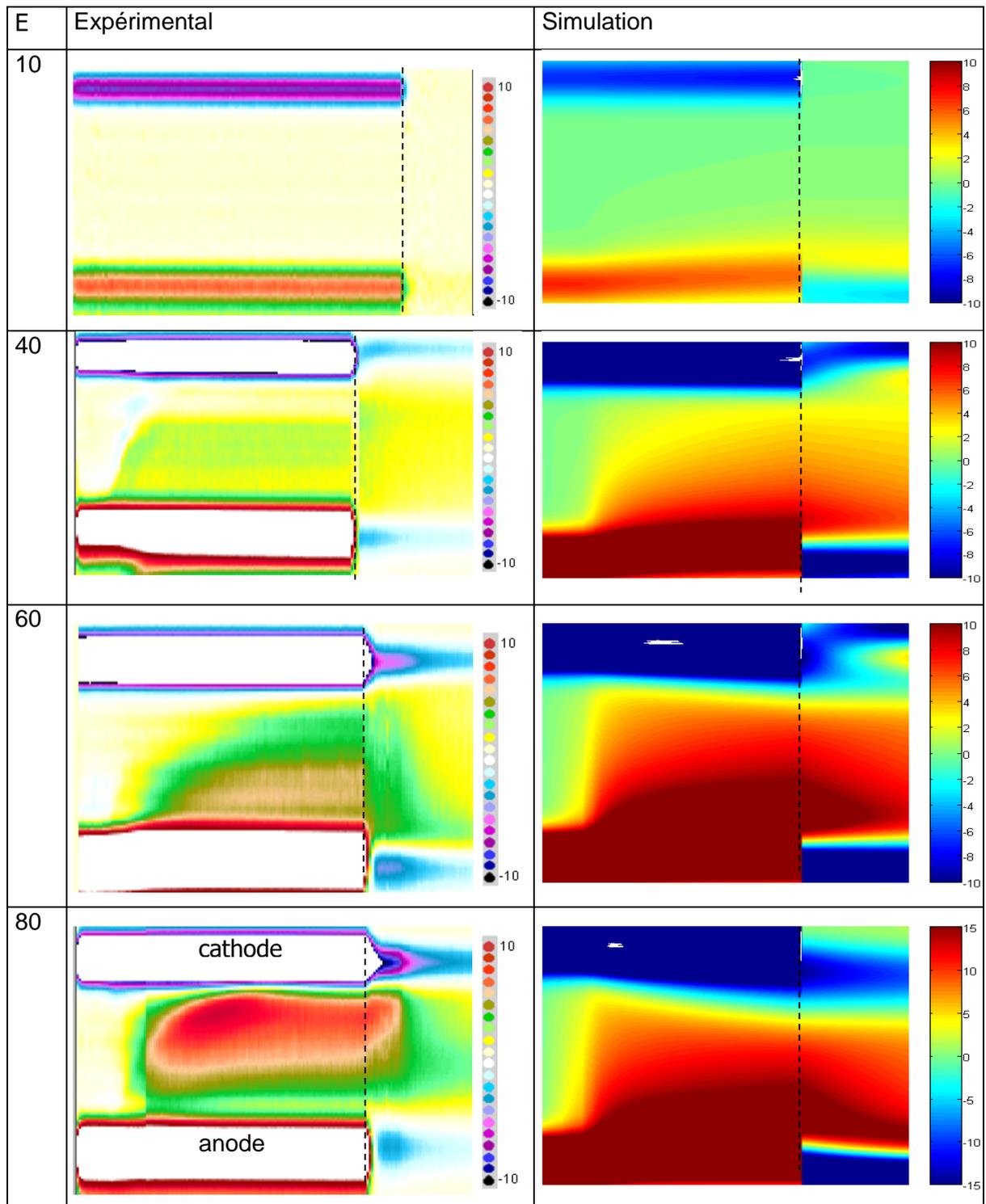
Les profils de charge d'espace expérimentaux et de simulation sont comparés dans le Tableau 2 pour les quatre champs électriques appliqués. Noter que les échelles de couleurs sont différentes pour l'expérience et la simulation. Les simulations tiennent compte de l'ajout post-simulation de la charge image aux électrodes. Globalement, le modèle est capable de reproduire les résultats expérimentaux obtenus, en particulier en polarisation. En effet, pour des champs électriques faibles (10 et 40 kV.mm<sup>-1</sup>), la simulation arrive à reproduire la

densité nette de charges, le temps de transit, et la dominance des charges positives par rapport aux charges négatives. Cependant, pour des champs plus élevés ( $60$  et  $80\text{kV}\cdot\text{mm}^{-1}$ ), la simulation montre une augmentation de la densité de charges, pour arriver à saturation à  $80\text{ kV}\cdot\text{mm}^{-1}$ , par rapport à l'échelle proposée ( $-10 / 10\text{ C}\cdot\text{m}^{-3}$ ). De plus, pour ces mêmes champs électriques, on voit nettement l'apparition de charges négatives, charges qui ne sont pas observées expérimentalement. Ces deux problèmes sont directement liés à l'injection de charges aux électrodes, par la loi de Schottky. Ainsi, même lorsqu'une densité non négligeable de charges est piégée à proximité de l'électrode et réduit le champ local, il existe toujours une injection. Ce phénomène explique d'une part l'augmentation de la densité de charges positives qui sont injectées à l'anode, et d'autre part l'apparition de charges négatives, dont la densité augmente et n'est plus masquée par les trous provenant de l'anode. En outre, la présence de charges positives à la cathode tend à renforcer le champ électrique.

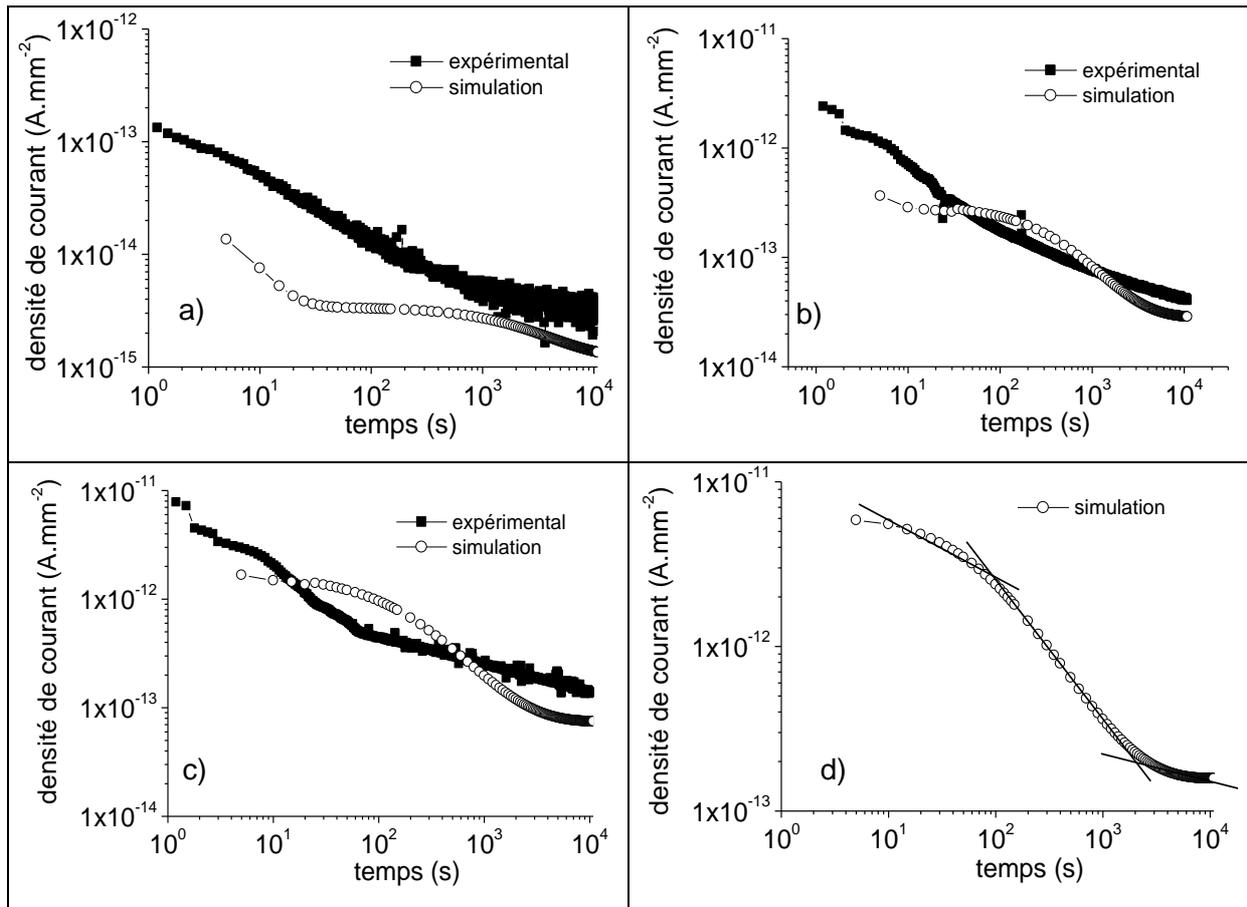
En dépolarisation, même à champ faible, la simulation montre des charges positives à proximité de l'anode, qui ne disparaissent pas, même après 3 heures de court-circuit. C'est encore plus vrai pour des champs plus élevés. Les charges observées après quelques secondes en dépolarisation sont toutes des charges piégées. L'hypothèse de dépiégeage ajoutée ne permet pas de faire disparaître la totalité de la charge, ou en tout cas pas assez rapidement. Il est à noter que la densité de charges en polarisation est déjà trop élevée, ce qui rend d'autant plus difficile l'ajustement des résultats expérimentaux en dépolarisation.

## 2. Mesures de courant

Pour les mêmes protocoles, les densités de courant de polarisation simulées sont confrontées aux résultats expérimentaux (Tableau 3), pour les quatre champs électriques à température ambiante. Il est à noter que la mesure de courant pour un champ de  $80\text{ kV}\cdot\text{mm}^{-1}$  n'a pas été réalisée. Le modèle est capable de reproduire quantitativement les résultats expérimentaux, quel que soit le champ appliqué. Qualitativement, l'allure de toutes les courbes de modélisation est similaire, on peut y décrire 3 pentes (détails dans la Figure d. du Tableau 3), alors qu'expérimentalement une seule rupture de pente est observée. Un changement de pente présente un changement de mécanisme dominant. Dans le cas présent, on peut penser que le courant expérimental à temps court est plutôt lié à des phénomènes polaires, même si le LPDE est un matériau peu polaire, et le courant à temps long à des phénomènes de conduction. Dans le modèle, les phénomènes polaires ne sont pas pris en compte. L'ajout d'une charge initiale a cependant permis de simuler des courants ayant le même ordre de grandeur que le courant expérimental à temps court, sans être sûr de la véracité de l'hypothèse physique. L'ajout de cette charge initiale ne permet cependant pas de reproduire l'allure qualitative de la courbe expérimentale, i.e. une seule rupture de pente, qui se produit de plus en plus tôt plus le champ électrique appliqué est élevé. L'ajout d'une charge initiale ne semble donc pas être suffisant pour reproduire le comportement expérimental. L'évolution du modèle de transport tenant compte des processus dipolaires sera développée dans le paragraphe E.3.



**Tableau 2** : Comparaison des profils de charges expérimentaux (à gauche) et de simulation (à droite) pour quatre champs appliqués à température ambiante. Noter que la répartition des couleurs dans les échelles de densités de charges sont différentes pour expérience et simulation.



**Tableau 3:** Comparaison des densités de courant de polarisation expérimentales et de simulation en fonction du temps pour : a) 10 kV.mm<sup>-1</sup>, b) 40 kV.mm<sup>-1</sup>, c) 60 kV.mm<sup>-1</sup>, et d) 80 kV.mm<sup>-1</sup>, à température ambiante.

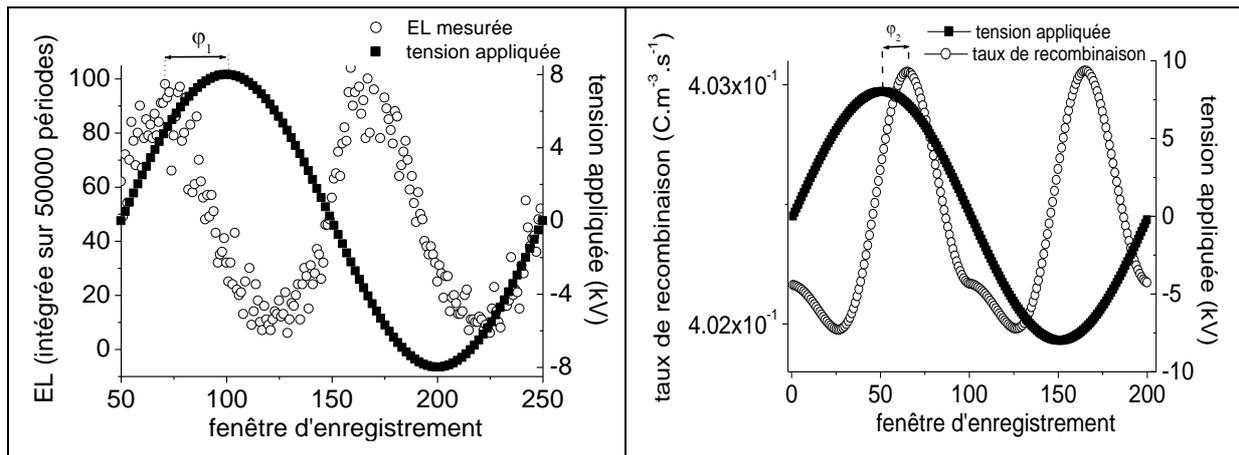
### E.1.b) Mesures sous tension alternative

Un protocole de mesure de l'électroluminescence sous tension alternative a été appliqué expérimentalement et au modèle. On considère ici que la réponse en électroluminescence est liée majoritairement à la recombinaison radiative des charges: celle-ci est donc directement comparée au taux de recombinaison entre les différentes espèces du modèle, intégré sur l'épaisseur de l'échantillon. La tension est de 8 kV crête sur un échantillon de 150  $\mu\text{m}$ , soit un champ r.m.s. de 37kV.mm<sup>-1</sup>, et la fréquence d'excitation est de 50 Hz. Les mêmes paramètres (Tableau 1) ont été utilisés pour cette simulation.

Le Tableau 4 présente la comparaison des résultats expérimentaux et ceux de simulation obtenus pour ce protocole. Les résultats sont obtenus par l'intégration du signal sur 50000 périodes, pour les mesures et pour le modèle.

Les résultats, expérimentaux ou de simulation, montrent l'obtention de deux pics d'EL, un pour chaque polarité, et dont l'amplitude ne semble pas dépendre du signe de la tension. Le signal expérimental peut être assimilé à une fonction sinus carré, ce qui n'est pas le cas au niveau de la simulation, puisqu'un épaulement est observé au pied des pics principaux.

D'autre part, le pic de luminescence est en avance de  $\varphi_1$  sur le pic de tension, alors que le pic de recombinaison des résultats du modèle est en retard de  $\varphi_2$  sur le pic de tension, avec  $\varphi_1$  et  $\varphi_2$  qui ne sont pas les mêmes (45 et 27 degrés respectivement). De plus, l'amplitude des variations du taux de recombinaison (simulation) est faible devant un fond continu qui augmente continûment au cours du temps. Au contraire, la mesure indique que le signal revient pratiquement au bruit de fond autour des abscisses 140 et 220.



**Tableau 4:** Comparaison des résultats expérimentaux (à gauche) et des résultats de simulation (à droite) pour un protocole de tension alternative de 8 kV, à une fréquence de 50 Hz.

La simulation n'est pas en mesure de donner des résultats cohérents avec les mesures expérimentales en courant alternatif. Le modèle ne décrit pas correctement les phénomènes ayant lieu dans le diélectrique en courant alternatif, puisque le pic de recombinaison de simulation est en retard sur la tension, alors que l'inverse est observé dans les mesures. Nous avons déjà remarqué, dans les paragraphes précédents, que l'injection de Schottky, qui tient compte de l'effet thermique, ne semble pas entièrement adaptée à notre modèle. L'influence de cette loi d'injection sur les résultats du modèle en DC semblait déjà poser quelques problèmes, mais il est possible qu'en courant alternatif, où les interfaces jouent un rôle clé, celle-ci soit complètement inadaptée.

### E.1.c) Points forts et faiblesses du modèle à deux niveaux de pièges

Le modèle à deux niveaux de pièges est un modèle dont les hypothèses physiques sont simples, où les paramètres ne sont pas liés, et qui globalement donne des résultats cohérents par rapport aux mesures pour des protocoles expérimentaux sous tension continue. Cependant, de nombreux points ont été soulevés lors de l'évaluation de ce modèle (tous n'ont pas été présentés dans le paragraphe précédent).

Le point le plus problématique semble être la génération de charges aux électrodes, qui impacte sur la totalité des autres processus physiques. Ainsi, sous tension continue, la densité de charges injectée semble largement trop élevée. Ceci est d'autant plus le cas

lorsqu'on augmente la température. Une différence notable d'injection entre les charges positives et négatives a été observée expérimentalement, et ce fonction du champ électrique et de la température. La loi d'injection de Schottky n'est pas suffisante pour réussir à traduire en terme de modélisation cette observation expérimentale. De même sous tension alternative, il semble que cette loi d'injection ne soit pas la plus adaptée, ou ne suffise pas à elle seule, à traduire les phénomènes physiques mesurés.

Un second point négatif vient de la mobilité constante des charges. Les modèles de transport de charges doivent être capable de prédire le comportement de la charges sous contrainte thermoélectrique. Or, il est difficile en l'état de monter en température sans changer la valeur de la mobilité. Lors de mes travaux de thèse, j'ai montré qu'il était possible d'utiliser une mobilité de type hopping, fonction de la température et du champ électrique, même si celle-ci n'a pas été utilisée pour la validation du modèle. Dans la suite des travaux de modélisation, la quasi totalité des modèles utilisent cette mobilité de type hopping.

Les mesures de courant sur du LDPE, un matériau peu polaire, ont montré que le modèle était mis en défaut à temps court, et ce car celui-ci ne prenait pas en compte les processus dipolaires. Ceci est aussi le cas lorsqu'on veut confronter le modèle à des mesures de courants thermo-stimulés, où la réponse peut être à la fois des phénomènes de relaxation de dipôles ou de relaxation de charges. Il semble donc pertinent, à court terme, de prendre en compte ces mécanismes physiques, d'autant plus que la majorité des matériaux polymères sont polaires.

D'autres études ont été effectuées, notamment sur des matériaux réticulés (polyéthylène réticulé - XLPE), donc contenant des sous-produits de réticulation. Les comparaisons entre mesure et simulation ont ici montré les limites du modèle, incapable de reproduire la dynamique de la charge d'espace. Le comportement de la charge d'espace dans ces matériaux réticulés n'est plus seulement dépendant des charges électroniques, mais d'autres espèces entrent en jeu, espèces qu'il faut pouvoir prendre en compte dans les modèles de transport. Ce n'est d'ailleurs pas uniquement le cas des matériaux de type XLPE, mais de nombreux matériaux polymères isolants montrent aussi un comportement dominé par des espèces ioniques, en fonction de la contrainte (électrique, thermique, irradiation...) appliquée [70,71,72]. Tous ces processus de génération, de transport, voire de polarisation d'espèces ioniques doivent donc être caractérisés, et insérés dans les modèles de transport de charges.

## **E.2. AMELIORATION DU MODELE DE GENERATION DE CHARGES AUX INTERFACES**

Nous avons vu, lors de l'évaluation du modèle, qu'un des points critiques portait sur la génération de charges aux interfaces, en utilisant l'équation de Schottky. En effet, celle-ci n'est pas utilisable avec des barrières d'injection réelles (abaissement de 5 à 1 eV de la barrière d'injection), et qu'elle ne permettait pas de reproduire certaines observations expérimentales telles que les mesures d'électroluminescence en AC. Les mêmes conclusions peuvent être tirées en se basant sur la littérature, qui montre là aussi le rôle prépondérant des interfaces dans la formation de la charge d'espace [29,31]. Cependant, les phénomènes en jeu à ces interfaces sont encore très peu connus, qu'il s'agisse d'une interface entre un métal ou en diélectrique, deux diélectriques, voire même un gaz et un diélectrique. Différentes études ont été menées afin de mieux comprendre et modéliser ces interfaces.

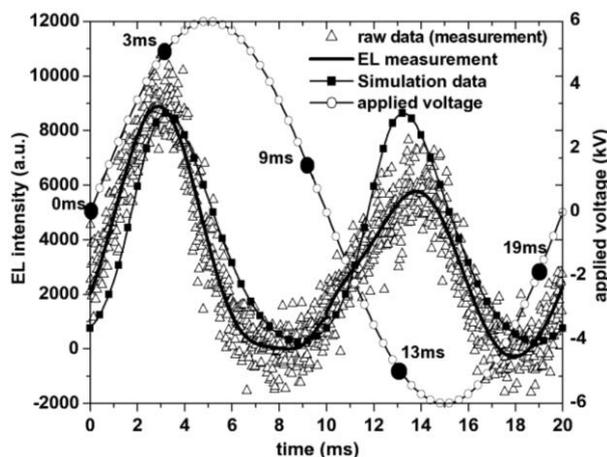
### E.2.a) Modélisation de l'électroluminescence sous tension AC

La première étude liée aux interfaces a porté sur la volonté de reproduire les mesures d'électroluminescence sous tension alternative (Tableau 4a), où le signal de luminescence montre un maximum qui est en avance par rapport au maximum de tension [P- 9,P- 12]. Ce travail a été réalisé majoritairement par F. Baudoin, de l'équipe DSF du LAPLACE, en collaboration avec le Tony Davis Laboratory à Southampton (U.K.). Pour cette étude, le modèle à distribution exponentielle de pièges a été utilisé, en ajoutant la recombinaison des charges de signe opposé. La loi d'injection de Schottky a été délaissée au profit d'une loi d'injection de la forme [73]:

$$j_{e,h}(x,t) = a \exp(bE(x,t))$$

où  $\alpha$  et  $\beta$  sont des constantes.

Grâce à cette nouvelle loi d'injection, il a été possible de reproduire l'avance du maximum du signal de luminescence sur celui de la tension appliquée (Figure 8). En effet, l'alternance d'une injection massive de charges positives puis négatives favorise la recombinaison des charges proches des électrodes. Ceci est d'autant plus le cas que les charges sont rapidement piégées proches des électrodes, car la mobilité diminue très rapidement dans le volume, celle-ci étant fonction de la densité de charges. Il s'agissait dans cette étude de voir si une autre équation d'injection pouvait suffire à améliorer la comparaison entre expérience et modélisation, et peut être ainsi donner des pistes pour mieux comprendre la physique. Ainsi, on a pu montrer la nécessité de ne pas utiliser une mobilité constante, mais une mobilité qui est fonction de variables caractéristiques telles que le champ électrique ou la densité de charges. D'autre part, cette nouvelle loi d'injection, qui n'est pas basée sur des concepts physiques, montre quand même que pour le cas d'une tension alternative, il est nécessaire d'avoir une accumulation de charges proche des électrodes afin de pouvoir annuler rapidement le champ électrique aux électrodes.



**Figure 8:** Comparaison entre l'électroluminescence mesurée et la recombinaison des charges simulée sous tension alternative.

### E.2.b) Prise en compte d'une zone d'interface et d'une nouvelle loi d'injection

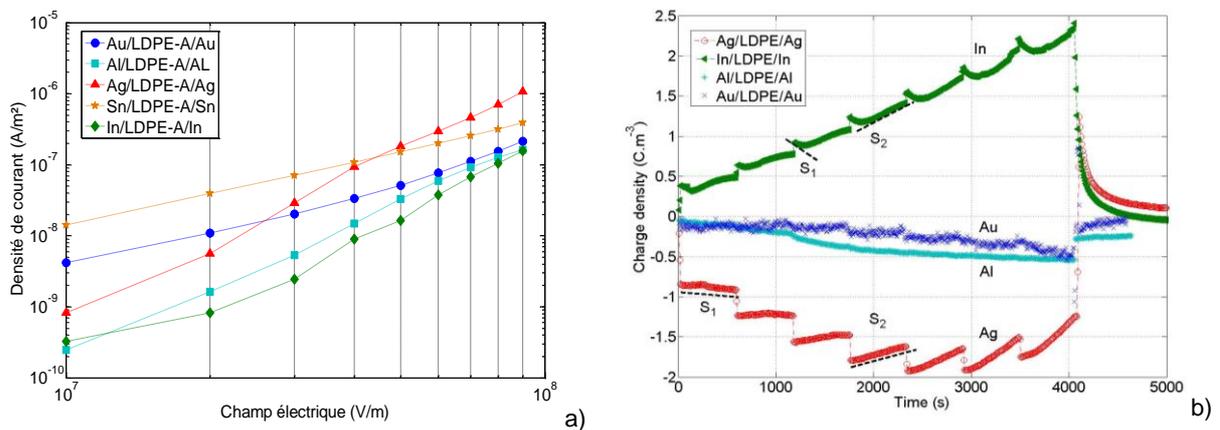
Les résultats présentés ici sont issus de la thèse de M. Taleb [T- 1].

Afin de mieux comprendre l'interface entre un métal et du LDPE, des mesures de courant et de charges d'espace par la méthode PEA ont été effectuées, pour des métaux d'électrodes ayant des travaux de sortie différents: Au: 5.1 eV, Ag: 4.7 eV, Sn:4.4eV, In: 4.12 eV et Al: 4 eV. Ces valeurs sont cependant des valeurs théoriques et ne tiennent pas compte de la possibilité pour certains métaux de s'oxyder ou d'être facilement contaminés, ce qui impacte de manière non négligeable leur travail de sortie [74].

Le protocole expérimental consiste en l'application de paliers de champ électrique de 10 kV/mm, avec un pas de temps de 10 min par palier, pour des champs électriques allant de 30 à 90 kV/mm. La Figure 9a) montre les densités de courant en fonction du champ électrique pour les différents métaux d'électrode. Les caractéristiques courant-champ montrent que les électrodes d'Argent fournissent un courant plus élevé que les autres métaux, spécialement à des champs électriques élevés. Les électrodes d'Aluminium, avec un travail de sortie faible, sont supposées être les électrodes qui injectent le plus (d'électrons), mais le courant mesuré est seulement plus élevé que celui de l'Indium. Il faut cependant noter que le courant extérieur mesuré est en fait la somme du courant lié aux électrons (injection et transport) et celui lié aux trous (injection et transport). Un travail de sortie important implique aussi une barrière d'injection plus faible pour les trous dans la bande de valence. Cependant, si l'on se base uniquement sur les travaux de sortie théoriques, il n'y a pas de cohérence entre les travaux de sortie et les densités de courant, quel que soit le signe de la charge envisagé.

Des mesures de charges d'espace ont été effectuées pour le même protocole expérimental. La densité nette moyenne de charges a été calculée et est présentée à la Figure 9b) en fonction du temps pour les différents métaux d'électrode. Les résultats pour l'indium montrent deux pentes, la première négative, à temps court, et la seconde positive. La première pente est caractéristique d'une injection de charges négatives, venant abaisser la densité de charge nette moyenne positive. La seconde pente correspond à une inversion

du signe dominant moyen, passant de négatif à positif. Le mécanisme est similaire pour les densités moyennes mesurées pour l'Ag, où la densité moyenne est nettement négative pour des champs inférieurs à 60 kV/mm, avec une pente  $S_1$  négative. Pour des champs plus élevés, la pente  $S_2$  devient positive, montrant la dominance d'une densité moyenne positive, i.e. l'injection de charges positives dans le matériau. Au contraire, pour l'or et l'aluminium, la charge reste négative, et en quantité faible. Ceci est d'autant plus surprenant que l'aluminium, ayant un travail de sortie faible comparé à celui de l'or, devrait montrer une injection plus élevée de charges négatives. Si l'on compare maintenant les résultats de densité de courant et de charges d'espace, il devient difficile de se baser uniquement sur les travaux de sortie pour expliquer correctement les résultats. On voit bien que l'indium, qui donne les courants les plus faibles, et ce quel que soit le champ appliqué, est aussi le matériau qui a la densité nette moyenne la plus élevée, en valeur absolue. Ce type de résultat a aussi été observé dans la littérature, pour des mesures de charges d'espace majoritairement [75,76].



**Figure 9:** a) Densités de courant en fonction du champ électrique pour du LDPE avec différents métaux d'électrode à  $T=25^{\circ}\text{C}$ . b) Variation de la valeur moyenne de la densité nette de charges en fonction du temps pour le cycle de tension appliquée, pour différents métaux d'électrode. Les paliers correspondent aux champ électriques de 30, 40 ... 90 et 0 kV/mm.

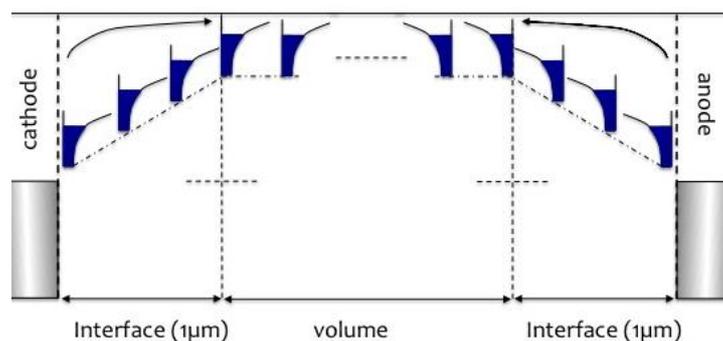
Il est donc nécessaire de prendre en compte d'autres mécanismes (états de surface, rugosité..), afin de décrire plus correctement la génération de charges aux électrodes.

Des mesures de rugosité ont été effectuées sur différents échantillons, et une modélisation a été réalisée afin de voir l'impact de la rugosité sur le champ électrique, et sur l'injection de charges, en utilisant uniquement l'injection de Schottky. Les résultats de simulation ont montré qu'une interface de rugosité  $\sim 2 \mu\text{m}$  pouvait accroître le courant de Schottky calculé de deux décades pour un champ électrique de 90 kV/mm et à température ambiante [CPI- 22]. Expérimentalement, le courant total mesuré pour une électrode rugueuse montre un ordre de grandeur de plus que celui mesuré pour une électrode 'plane', pour un champ électrique de 90 kV/mm. Le courant total étant la somme de plusieurs courants (injection et conduction pour les électrons et trous, diffusion, déplacement), le

résultat montre que l'impact de la rugosité sur le comportement des charges dans le matériau est non négligeable.

En s'appuyant sur les résultats expérimentaux précédents, un modèle de transport de charges a été proposé, qui tient compte de l'existence d'un nombre plus important de pièges plus profonds aux interfaces en comparaison avec le volume du diélectrique. Cette hypothèse physique a été proposée sur la base de travaux sur les semi-conducteurs [77,78], sur les isolants polymères [76,79], et sur des modèles de mécanique quantique développés ces dernières années [22].

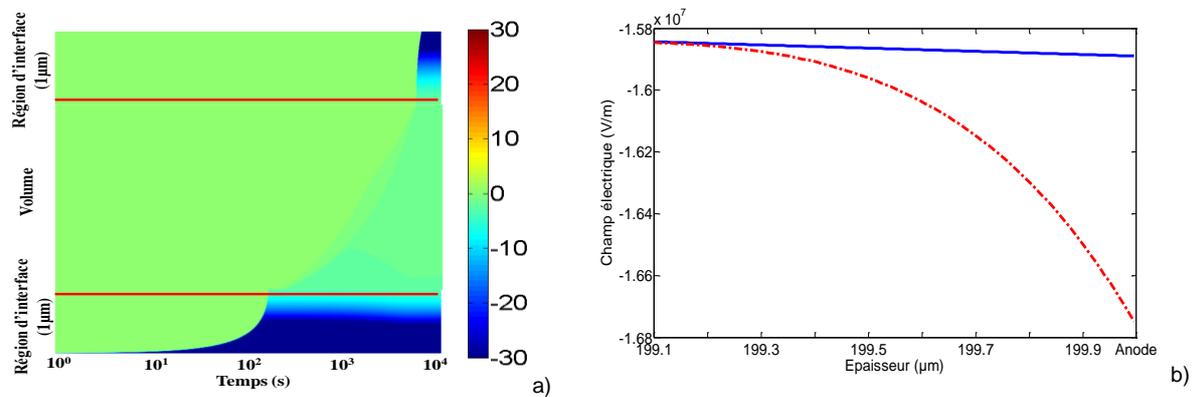
Le modèle présenté ici est basé sur le modèle à distribution exponentielle de pièges. Il est bipolaire et unidimensionnel. L'interface est caractérisée par une distribution exponentielle de pièges, dont la profondeur maximale diminue plus on s'éloigne de l'électrode (variation linéaire sur  $1 \mu\text{m}$ ) (Figure 10). Ainsi, pour chaque type de porteur, il existe un plus grand nombre de pièges dans chaque zone d'interface. Cela a un impact à la fois sur l'injection de charges mais aussi sur l'extraction de ces charges à la contre-électrode. La mobilité des charges dans la zone d'interface est de type 'hopping' et dépend du champ électrique, des caractéristiques de la distribution exponentielle, ainsi que de la charge déjà piégée.



**Figure 10.** Représentation schématique de la modélisation d'une zone d'interface à chaque électrode, avec une distribution exponentielle de pièges dont les variables diminuent en s'éloignant de l'électrode.

Afin de montrer l'impact de l'interface sur le transport et l'accumulation de charges, le modèle a été testé en unipolaire, avec une zone d'interface à l'anode et à la cathode pour les électrons [CPI- 22,CS- 8]. La Figure 11a) présente la cartographie de la densité d'électrons en fonction de l'épaisseur du diélectrique et du temps pour un champ électrique appliqué de  $10 \text{ kV/mm}$ . La figure est scindée en trois parties qui représentent respectivement la zone d'interface proche de la cathode ( $1 \mu\text{m}$ ), le volume du diélectrique ( $198 \mu\text{m}$ ) et enfin la zone d'interface proche de l'anode ( $1 \mu\text{m}$ ). Les électrons, injectés à la cathode, pénètrent rapidement dans le diélectrique, et ils atteignent la zone d'interface proche de l'anode et 160s environ. Lorsque ces électrons arrivent à l'anode, ils se piègent dans des pièges plus profonds et leur mobilité est réduite. L'accumulation de ces charges à l'anode implique une augmentation du champ électrique à cette interface avec le temps (Figure 11b). Ce type de renforcement du champ est susceptible de favoriser l'injection de trous à l'anode (non inclus

dans le présent exemple). Cette hypothèse avait déjà été testée, de manière empirique (ajout d'un simple coefficient d'extraction) dans [CPI- 12] et avait montré des résultats encourageants. Cependant, même si ce mécanisme a réellement lieu, la zone d'interface est tellement fine qu'il n'est pas possible d'observer expérimentalement cette accumulation, du moins avec des techniques 'habituelles' de mesure de charge d'espace.



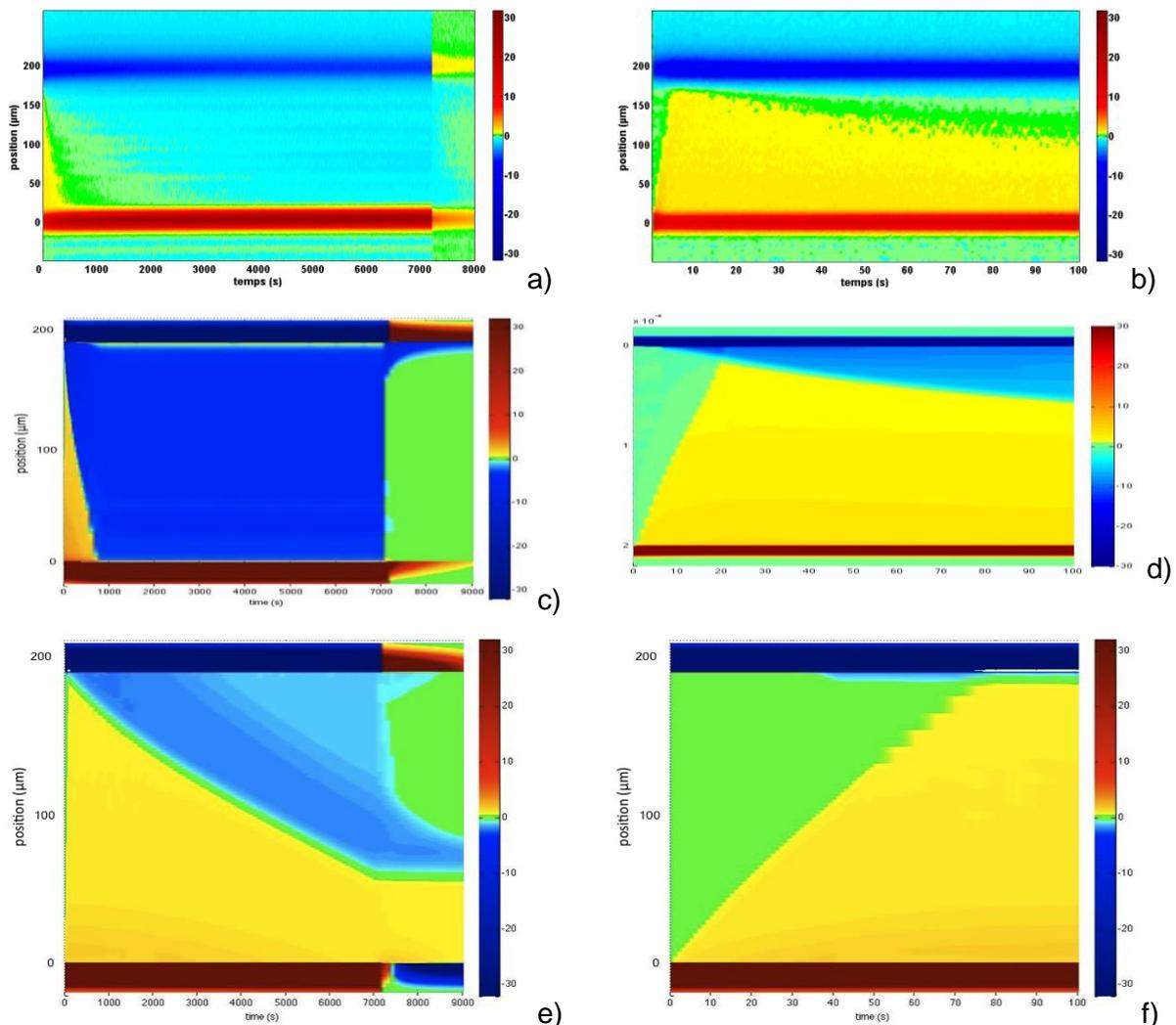
**Figure 11.** a) Cartographie de la densité d'électrons simulée en fonction de l'épaisseur de l'échantillon et du temps pour un champ appliqué de 10 kV/mm. Echelle logarithmique pour l'axe des x. De haut en bas: région d'interface proche de l'anode, volume du diélectrique, région d'interface proche de la cathode. b) Champ électrique en fonction de la position dans la zone d'interface proche de l'anode, avec (ligne pointillée) et sans (trait plein) états d'interface. Les données sont prises après 3h de polarisation à 10 kV/mm et à température ambiante.

Ce modèle d'interfaces a ensuite été validé grâce à des mesures de charges d'espace (PEA) sur du LDPE d'épaisseur 200  $\mu\text{m}$ , non métallisé, polarisé sous un champ électrique de 30 kV/mm à une température de 40°C pendant 2h, puis mis en court-circuit pendant 30 min [80].

La comparaison entre les mesures et les simulations est présentée à la Figure 12. Les cartographies de gauche représentent la totalité du protocole expérimental, et celles de droite présentent le zoom sur les 100 premières secondes, pour les mesures (Figure 12a et b), les simulations tenant compte d'interfaces (Figure 12c et d), et des simulations ne tenant pas compte d'interfaces (i.e. Schottky uniquement) (Figure 12e et f). Pour les deux simulations, les paramètres sont les mêmes, seule la zone d'interface a été ajoutée pour chaque électrode [P- 13]. On voit bien, en comparant les deux simulations, que l'injection de Schottky ne permet pas de reproduire les caractéristiques particulières des mesures, i.e. une injection et un transport très rapide de charges positives, qui viennent perturber le champ électrique à la cathode, impliquant une brusque injection de charges négatives et une propagation de celles-ci dans tout le volume du matériau. En revanche, le modèle avec interfaces, moyennant une paramétrisation optimale, est capable de reproduire ces mêmes caractéristiques [P- 13].

Cette étude nous permet de montrer qu'il est nécessaire, pour continuer à comprendre le comportement des charges dans un isolant solide, de s'intéresser aux électrodes, et/ou aux

interfaces, qui sont des zones complexes et qui ne peuvent se résumer à une loi d'injection de Schottky. Il faut aussi noter que ce modèle, même s'il a donné des résultats relativement corrects par rapport aux mesures, est très difficile à paramétrer, et qu'il repose sur des hypothèses qui restent à vérifier (extension des zones de pièges aux interfaces par exemple).

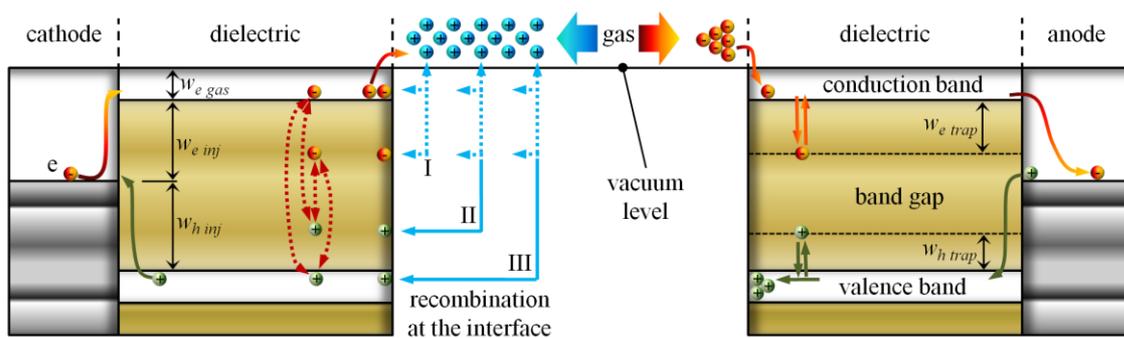


**Figure 12 :** Profils de charges d'espace obtenus sur un LDPE de 200  $\mu\text{m}$  sous un champ électrique de 30 kV/mm, et une température de 40°C. a) Mesure [80], b) zoom sur les 100 premières secondes de mesures, c) simulation avec interfaces, d) zoom simulation avec interfaces, e) simulation sans interfaces, f) zoom simulation sans interfaces.

### E.2.c) Interfaces gaz/diélectrique

De nombreuses questions se posent aussi sur le traitement de l'interface gaz/diélectrique, qui est rencontrée dans le domaine du génie électrique mais aussi dans le domaine des plasmas (décharges à barrière diélectrique...), ou sur l'interface vide/diélectrique dans le domaine du spatial. Les phénomènes physiques sont là encore peu connus, et il est donc difficile de modéliser correctement les systèmes en jeu.

Dans le domaine du génie électrique, il existe des microcavités au sein même des diélectriques, dans lesquelles des décharges peuvent apparaître. Un des schémas privilégié dans le vieillissement des matériaux isolants est l'agrandissement de ces vacuoles dû aux décharges répétées, qui conduisent à terme à la rupture diélectrique. Un modèle développé dans le cadre de l'ANR JCJC UltimatePD, permet de modéliser le transport de charges en une dimension dans un diélectrique contenant une vacuole remplie d'air, pour des contraintes continues et alternatives [CPI- 21,CPI- 24] (Figure 13). Ce modèle montre notamment dans quelles conditions il est possible d'obtenir des décharges régulières. Une étude plus théorique sur les coefficients d'émission secondaire d'électrons à la surface d'un diélectrique dû au bombardement d'espèces chargées, ou excitées, a montré un lien entre le remplissage des pièges à la surface d'un diélectrique (MgO et PE) et la valeur du coefficient d'émission secondaire [CS- 9], même si cet impact reste faible. Un résultat important de ce travail montre que la neutralisation Auger peut mener à l'émission d'un électron, à la réflexion de l'électron à la surface ou à la promotion d'un électron de la bande de valence vers des pièges, et que ce mécanisme pourrait être le précurseur de l'exo-émission électronique.



**Figure 13.** Diagramme énergétique des processus pris en compte dans le modèle d'interface gaz/diélectrique.

#### E.2.d) Modélisation des paquets de charges grâce à des hypothèses sur l'interface

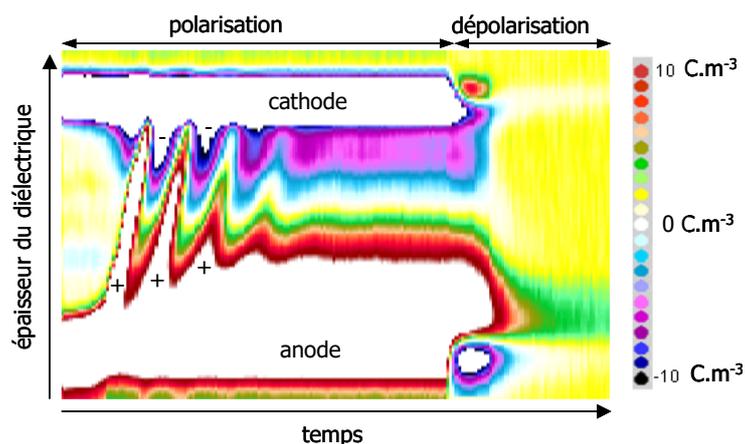
Depuis longtemps, les chercheurs ont tenté de comprendre et de reproduire un phénomène particulier rencontré notamment dans le polyéthylène (LDPE [81] ou XLPE [82]): les paquets de charges (Figure 14). Il me paraît important d'aborder ces phénomènes dans cette partie E car de nombreux auteurs se sont appuyés sur des processus aux électrodes afin d'expliquer et de modéliser ce phénomène.

Ainsi, Hozumi & al [83] ont tenté de reproduire des paquets de charges à l'aide de modèles fluides, en prenant comme hypothèse à l'interface une hystérésis sur l'injection de charges positives. Pour un champ inférieur à un champ seuil, l'injection est de type Schottky. Au dessus de ce champ seuil, le flux injecté est multiplié par 3000. Lorsque le champ à l'interface diminue, le retour à une condition normale d'injection, i.e. Schottky, se fait pour un champ inférieur au champ seuil de montée. Ils ont réussi grâce à cette hypothèse à modéliser des paquets de charges.

Zheng & al [49] ont développé un modèle fluide de transport de charges dans lequel l'interface pour les charges positives est traitée comme un réservoir de charges qui sont piégées dans une zone d'interface  $d_0$ , jusqu'à ce que le champ électrique local excède un champ seuil. Lorsque ce champ seuil est atteint, les charges peuvent se dépiéger, et être ainsi libérées dans le volume du diélectrique. Ce type d'hypothèse, couplée à une mobilité différentielle négative, leur permet de reproduire des mesures de charges d'espace pour des champs appliqués élevés où des paquets de charges sont observés.

Enfin, Baudoin & al [P- 15] ont montré les différences qu'il pouvait exister sur la création et la propagation des paquets de charges pour les hypothèses prises en compte dans les deux modèles cités plus haut, i.e. une mobilité différentielle négative ou une hypothèse de seuil en champ drivant l'injection.

Ces modèles, avec des hypothèses 'empiriques' fortes sur l'injection et l'introduction nécessaire de processus d'hystérésis sous une forme ou une autre, ont été développés spécifiquement pour reproduire une particularité du polyéthylène à haut champ, i.e. l'apparition de paquets de charges. Je reviendrai sur ces phénomènes de paquets de charges par la suite.

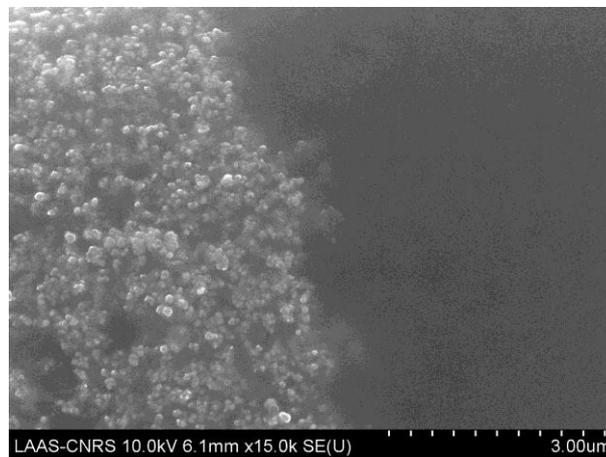


**Figure 14:** Mesure de la charge d'espace par PEA sur du polyéthylène basse densité, pour un champ appliqué de  $80 \text{ kV}\cdot\text{mm}^{-1}$ , montrant la propagation de paquets de charges positives [68] (film de PE de  $200 \mu\text{m}$  d'épaisseur, pour trois heures de polarisation et trois heures de dépolariation). La couleur blanche à proximité de chaque électrode montre une saturation de la densité nette de charges, et non une densité nulle.

#### E.2.e) Interfaces à l'échelle nanométrique

Les techniques de microscopie en champ proche se sont fortement diversifiées au cours des dernières années et ne sont plus désormais cantonnées aux seuls laboratoires experts dans le domaine. Elles sont maintenant exploitées plus largement par les spécialistes des matériaux et des 'micro-' ou 'nano-'objets. Pour ce qui concerne les matériaux diélectriques, des techniques dérivées de la microscopie à force atomique –AFM-, telles que la microscopie à force électrostatique –EFM-, ou à force de Kelvin –KFM-, permettent d'obtenir de nouvelles informations, à l'échelle nanométrique, sur l'état de charge des isolants et sur leur capacité à

stocker/dissiper les charges. Cet outil a été utilisé afin de comprendre les phénomènes de génération de charges aux interfaces métal/isolant organique et ce, à l'échelle nanométrique. Pour cela, il a d'abord fallu réaliser des interfaces d'objets (échantillons) qui puissent être mesurables par technique AFM, c'est à dire avec une rugosité de surface très faible ( $< \mu\text{m}$ ). Le projet financé par le BQR interne du GDR SEEDS a permis de développer une technique particulière pour la réalisation de tels objets. Des échantillons de LDPE d'épaisseur  $< 50 \mu\text{m}$  ont été réalisés à l'aide d'une presse hydraulique. Ces derniers ont ensuite été métallisés (sputtering Or 60 nm) et découpés par ultracryotomie, qui permet de produire des échantillons très fins. Des interfaces semi-conducteur/LDPE (SC/LDPE) ont aussi été réalisées par la même technique. Une observation MEB de l'interface SC/LDPE est présentée à la Figure 15. On peut notamment observer que l'interface n'est pas discrète, que le noir de carbone contenu dans le SC forme des agrégats, et qu'il existe des inclusions de noir de carbone dans le LDPE.



**Figure 15.** Observation MEB d'une interface SC/LDPE.

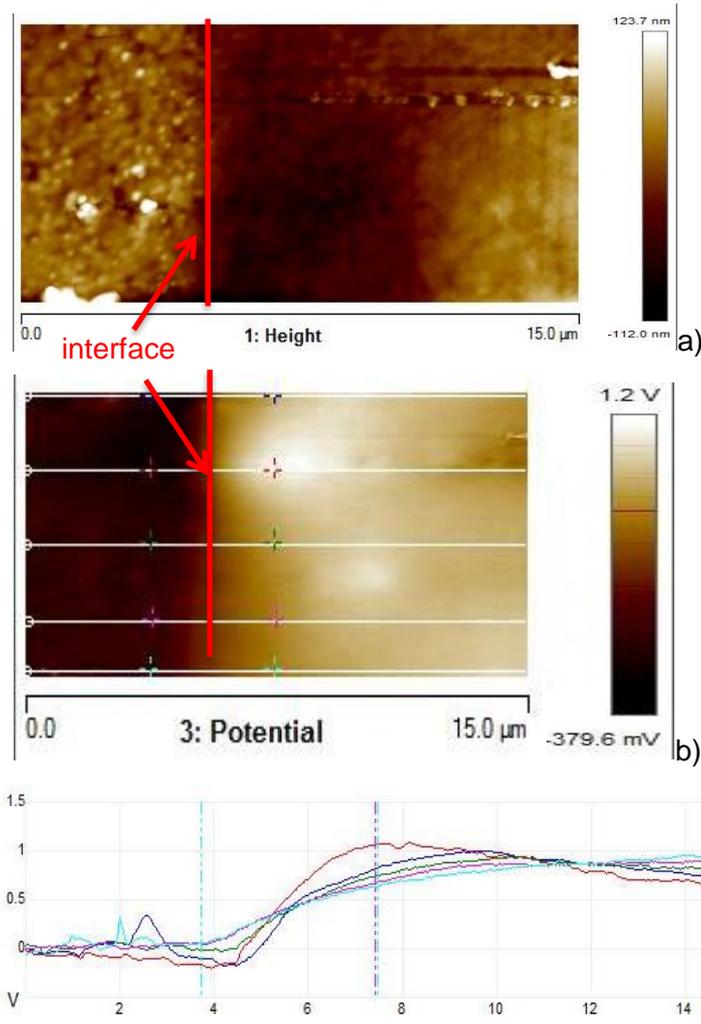
Des mesures de topographie, d'adhésion et de potentiel de surface ont ensuite été réalisées par C. Villeneuve-Faure (équipe DSF du LAPLACE) sur ces mêmes échantillons (Figure 16a), b) et c) respectivement). Le but est d'une part d'observer les variations de propriétés d'adhésion entre le SC et le LDPE, et ensuite de voir s'il existe une différence de potentiel entre le SC et le LDPE. En topographie, les mesures montrent une rugosité de surface de l'ordre de la centaine de nm, avec une rugosité plus marquée au niveau du SC, ce qui est en adéquation avec les observations MEB précédentes, qui montrent des agrégats de noir de carbone au sein du SC.

Théoriquement, le SC et le LDPE ont des niveaux d'énergie de Fermi qui sont différents. Lors du contact entre le SC et le LDPE, il y a échange de charges afin d'obtenir un équilibre thermodynamique qui se traduit par l'alignement des niveaux d'énergie de Fermi. Cet échange de charges induit des charges de contact, sans application d'une tension, charges qui doivent être mesurables par mesures dérivées de l'AFM. Ces mesures de potentiel de surface ont été effectuées sur une interface SC/LDPE et sont présentées à la Figure 16c. Il est donc possible de mesurer une différence de potentiel non négligeable (ici 1V) entre le SC et le LDPE. Ces données sont des résultats préliminaires qui ont permis d'une part de développer un projet

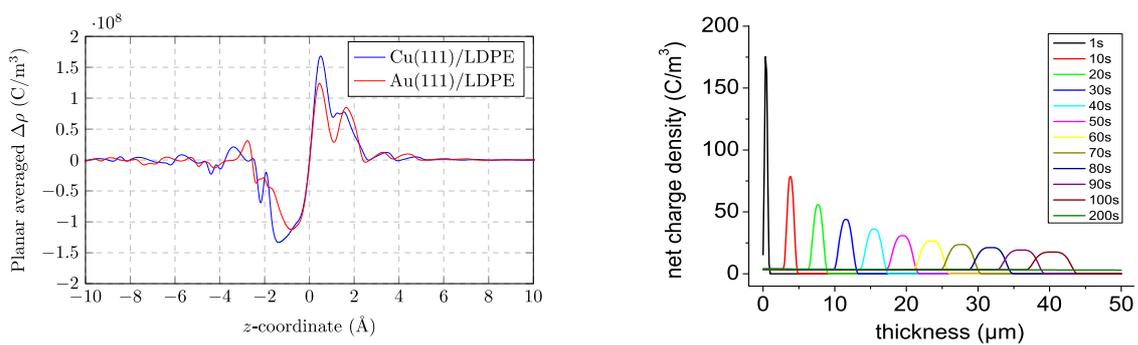
avec l'industriel ABB, et d'autre part de développer une partie simulation, en couplant la modélisation fluide et la modélisation à l'échelle atomique.

Le projet ABB porte sur l'amélioration de la compréhension des phénomènes physiques à une interface polymère isolant/électrode semi-conductrice, et a pour objectif final la modélisation des isolants pour applications HVDC entre autres. Des mesures à l'échelle nanométrique (topographie, potentiel de surface) ont été effectuées sur ces interfaces [CPI-40] en utilisant l'AFM en mode Peak Force Amplitude Modulation Kelvin Probe Force Microscopy (PF-AM-KPFM), et ont confirmé la mesure d'une différence de potentiel de surface entre le LDPE et le matériau d'électrode. De plus, grâce à ces mesures en champ proche, il a été observé une différence de propriétés électriques et physico-chimiques selon que les échantillons étaient mis en oeuvre avec un moule en polyimide (PI), en polyéthylène téréphtalate (PET) ou en Aluminium (Al). En effet, différentes mesures à l'échelle macroscopique (courant, photoluminescence, charges d'espace) montrent des différences non négligeables entre les différents échantillons [CPI-42]. Il paraît donc impératif de contrôler la mise en oeuvre des échantillons.

Le projet financé par le BQR du GDR SEEDS a aussi permis une collaboration entre le LAPLACE et A. Huzayyin, de l'Université du Caire, qui travaille sur la modélisation à l'échelle atomique des interfaces. La modélisation à l'échelle atomique permet d'obtenir des informations sur le désordre physique et chimique à une interface, mais aussi sur la variation de la permittivité ou la charge de transfert liée à cette interface. Ces informations peuvent être utilisées, directement (cas de la charge de transfert), ou indirectement (désordre), dans les modèles fluides. Les simulations à l'échelle atomique ont été effectuées pour une interface LDPE/Or, et ont permis notamment de calculer la densité de charges de contact induite par la mise en contact des deux matériaux. Cette charge est de l'ordre de  $10^8 \text{C/m}^3$  et la zone d'interface s'étend sur une dizaine d'Angströms (Figure 17a). Ces valeurs de charges de contact ont été ajoutées à un modèle fluide bipolaire à deux niveaux de pièges, et les simulations ont permis de mettre en lumière l'impact de la charge de contact sur la propagation des charges injectées (Figure 17b). En effet, lorsque la densité de charges de contact est suffisamment élevée, elle permet de limiter l'injection et de laisser partir une densité de charges qui se propage sous forme de gaussienne [CPI-38]. Ce type de caractéristique (propagation sous forme de gaussienne unique) a déjà été mesuré expérimentalement [84,85], et a été expliqué notamment par la variation abrupte de l'injection de charges à l'électrode en fonction du champ électrique. Cette première étude de couplage entre modélisation ab initio et modélisation fluide semble montrer que l'hypothèse empirique pour modéliser les paquets de charges, i.e. un hystérésis sur l'injection [49,83], peut être expliquée physiquement par la présence de charges de contact. Un gros travail reste à faire sur ce sujet, afin de correctement décrire l'interface et donc la génération de charges (et l'extraction).



**Figure 16.** a) topographie, et b) potentiel de surface sur une interface SC/LDPE. c) Potentiel de surface pour différents points sur la cartographie b).



**Figure 17.** a) Densité de charges simulée par modélisation à l'échelle atomique, pour un axe perpendiculaire à la surface de l'électrode, et b) densité nette de charges simulée grâce au modèle fluide pour une charge de contact calculée par modélisation à l'échelle atomique.

### E.3. CARACTERISATION ET MODELISATION DE LA REPONSE D'UN MATERIAU POLAIRE

La validation du modèle à deux niveaux de pièges a montré ses limites lors de la modélisation des courants à temps courts, puisque le modèle n'était pas capable de rendre

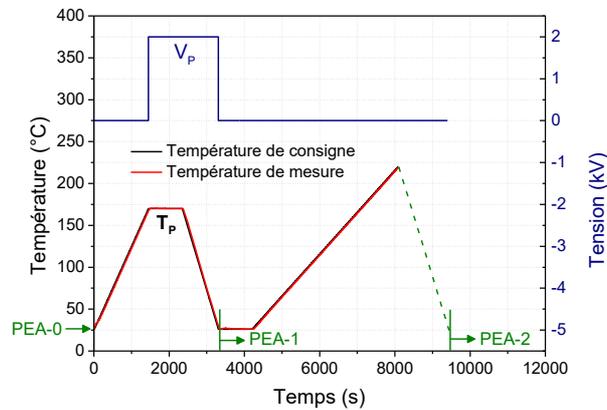
compte des mesures. Ceci a été analysé comme étant dû à la non prise en compte des phénomènes de polarisation dipolaire dans le modèle de transport. Or, la prise en compte de ces mécanismes de polarisation pourrait nous donner une réponse non seulement sur ces mesures de courant, mais aussi sur d'autres types de mesures comme des mesures de courant thermo-stimulés (TSDC), où certaines signatures sont associées à des relaxations polaires, alors que d'autres processus physiques pourraient entrer en jeu (dépiégeage des charges par exemple). La modélisation pourrait dans ce cas renseigner sur les grandeurs mesurées et leur origine. Il nous a donc paru nécessaire d'insérer la polarisation dans nos modèles de transport. Cependant, il n'a pas été possible de travailler sur le LDPE, matériau très peu polaire. Nous avons donc choisi un matériau très polaire, le poly(éthylène naphthalate) -PEN, afin de développer notre étude, qui a été financée grâce à l'ANR JCJC ModElec. Les travaux présentés ici font partie de la thèse de Quyen Mai Hoang [T-4], dont les objectifs étaient la caractérisation, la compréhension des phénomènes de transport et de polarisation dans du PEN, et la modélisation du matériau sous contrainte thermoélectrique. Je montre dans cette section E.3. le cheminement expérimental qui a mené à la caractérisation du matériau, grâce notamment à des mesures originales, pour ensuite présenter la modélisation des mécanismes polaires, et enfin le couplage entre mécanismes polaires et transport de charges.

### E.3.a) Compréhension des mécanismes physiques dans du PEN - aspect experimental

L'objectif était ici de caractériser les mécanismes polaires dans le PEN, à l'aide de différentes mesures (temporelles ou fréquentielles) disponibles au laboratoire.

Des mesures de TSDC ont été effectuées sur du PEN d'épaisseur 188  $\mu\text{m}$ . Le protocole expérimental est présenté à la Figure 18. L'échantillon est polarisé à 2 kV et à une température  $T_P$  pendant 15 min. L'échantillon est ensuite refroidi sous champ à une température de 25°C. La tension est alors supprimée et l'échantillon est mis en court-circuit pendant 15min. Enfin l'échantillon est réchauffé grâce à une rampe de température linéaire de 25°C à 220°C à une vitesse constante de  $v = 3^\circ\text{C}/\text{min}$ . Le courant de dépolarisation est enregistré durant cette rampe de montée en température. L'activation thermique dans le diélectrique va induire le retour à l'équilibre séquentiel des différentes familles de dipôles précédemment orientés. En fonction de la température, chaque famille de dipôles est relaxée, ou les charges accumulées sont libérées, induisant des pics de relaxation sur le courant externe. Différentes mesures ont été effectuées en faisant varier la vitesse de montée en température, le temps de polarisation, la tension de polarisation. La totalité de ces résultats a été publiée dans [P- 17]. Je ne montre ici que les résultats de TSDC obtenus pour différentes tensions de polarisation (de 1 à 2 kV, soit un champ électrique allant de 5 à 10 kV/mm), qui sont présentés à la Figure 19a) pour une température de polarisation de 130°C et Figure 19b) pour une température de polarisation de 170°C. La Figure 19a) montre deux pics de relaxation. Le premier pic, dont le maximum est situé à 60°C, est appelé  $\beta^*$  et est lié au mouvement des deux cycles benzéniques et leurs groupes carbonyles voisins qui peuvent tourner autour du squelette du PEN [86,87]. Le second pic, appelé  $\alpha$ , dont le maximum est situé à 140°C, est lié à la transition vitreuse du matériau et a pour origine les

mouvements micro browniens des longs segments de chaînes [88]. Pour une température de polarisation plus élevée (Figure 19b), ces deux pics  $\beta^*$  et  $\alpha$  sont observés. Un troisième pic, appelé  $\rho$ , est détecté avec un maximum situé à 180°C. La réponse des pics  $\beta^*$  et  $\alpha$  est linéaire avec la tension de polarisation, pour les deux températures de polarisation, ce qui tend à montrer que ces pics sont liés à des processus de polarisation d'orientation.

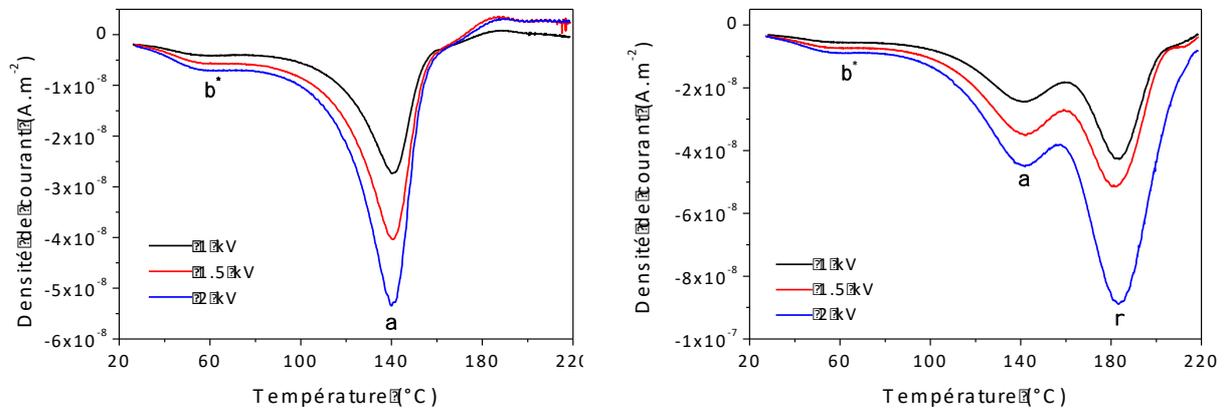


**Figure 18:** Protocoles de tension et de température utilisés pour les mesures TSDC et faisant apparaître les temps auxquels l'échantillon est sorti de l'enceinte TSDC pour réaliser les mesures PEA.

Par contre, la réponse du pic  $\rho$  n'est pas linéaire avec la tension de polarisation. L'origine de ce pic  $\rho$  est attribué dans la littérature soit à des mécanismes de recristallisation induisant des dipôles ou piégeant localement des charges [89], soit à des mouvements de charges dans le matériau [90].

Afin de vérifier l'origine de ce troisième pic, des mesures originales ont été proposées, couplant les mesures de charge d'espace aux mesures TSDC. Le montage PEA utilisé ne permet pas d'effectuer des mesures de charge d'espace à des températures supérieures à 70°C, alors qu'il est nécessaire de polariser et de chauffer l'échantillon de PEN à des températures beaucoup plus élevées ( $\geq 130^\circ\text{C}$ ). Notre stratégie a donc été de figer à la température ambiante l'état de polarisation du matériau pour différentes températures de polarisation. Tous les échantillons ont été pré-conditionnés dans la cellule TSDC, dans des conditions identiques à celles utilisées pour les mesures TSDC. L'échantillon a ensuite été refroidi à 25°C puis transféré dans la cellule PEA et les mesures de charge d'espace ont été effectuées en condition de court-circuit. Les mesures PEA ont été effectuées pendant 15 minutes à température ambiante afin de vérifier la stabilité du profil de charge. La méthode PEA nécessite une calibration de l'instrument en utilisant un échantillon vierge, c'est-à-dire un échantillon non-chargé. Avec la procédure adoptée ici, la calibration ne peut pas être faite avant chaque mesure PEA, car l'échantillon n'est plus « non-chargé » suite à sa polarisation à une température  $T_P$  (130°C ou 170°C) sous une tension de 2kV conformément au protocole utilisé pour les mesures TSDC. Par conséquent, pour chaque échantillon, le signal de calibration est pris avant l'application du protocole de polarisation (PEA-0 sur la Figure 18), en appliquant une tension de calibration de 1kV pendant 10s. Le même signal de calibration a été utilisé pour toutes les mesures PEA sur le même échantillon. La calibration

du signal est obtenue avec une procédure standard décrite dans la littérature [91]. Les charges d'influence (charges capacitives et charges images de charges internes) sont détectées par la méthode. Nous analyserons les réponses suivant ces différentes contributions.



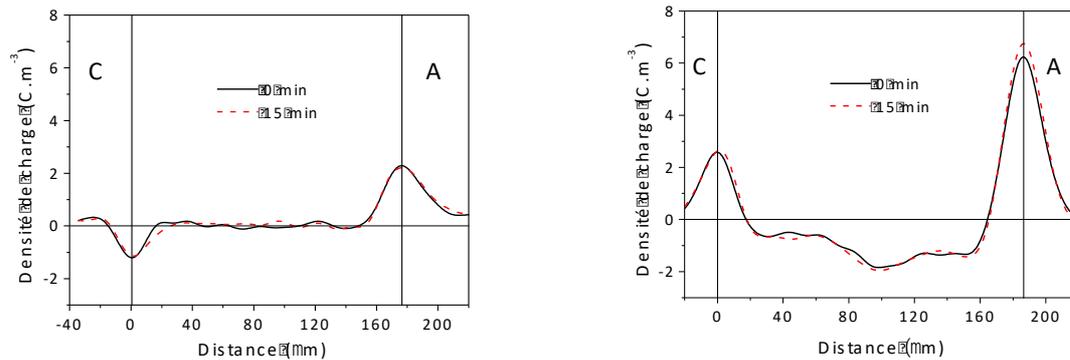
**Figure 19:** Spectres TSDC obtenus sur du PEN pour différentes tensions de polarisation a) pour une température de polarisation de 130°C et b) pour une température de polarisation de 170°C.

La Figure 20a montre les profils de charge d'espace enregistrés sur un échantillon de PEN, polarisé à une température  $T_P = 130^\circ\text{C}$ , avant la rampe de température (PEA-1 sur la Figure 18). Aucune charge n'est détectée dans le volume de l'échantillon, même après 15 minutes en condition de court-circuit. Par contre, des charges de polarité opposée sont détectées à chaque électrode, et elles ne se déplacent pas avec le temps. D'une manière générale, ces charges d'influence peuvent avoir différentes origines, étant :

- des charges capacitives dues à la tension appliquée,
- des charges images dues aux charges stockées dans le volume du diélectrique,
- des charges d'influence dues à l'orientation dipolaire figée à la température ambiante.

Comme les mesures sont effectuées en condition de court-circuit, la première hypothèse peut être rejetée. De plus, il n'existe pas de charges dans le volume de l'isolant et donc l'hypothèse de charges images dues aux charges d'espace dans le volume doit aussi être écartée. Par conséquent, seuls les processus dipolaires peuvent expliquer les charges d'influence. Les charges mesurées correspondent à la polarisation, figée lors du refroidissement à température ambiante, après avoir appliqué le champ électrique. Dans ce cas, les charges sur les deux électrodes doivent être de même densité, mais avec des signes opposés, si l'on considère que les dipôles sont répartis de manière homogène dans tout le volume du matériau. Ce qui est globalement le cas si on considère l'erreur qui peut être faite sur l'électrode la plus éloignée du capteur PEA. Le signal mesuré après la rampe de température ((PEA-2 sur la Figure 18) ne présente plus de charges d'influence sur les électrodes ou de charges d'espace dans le volume. Par conséquent, tous les processus dipolaires ont été libérés après la rampe de température.

La Figure 20b montre les profils de charge d'espace enregistrés sur un échantillon de PEN, polarisé à une température  $T_P = 170^\circ\text{C}$ , avant la rampe de température (PEA-1 sur la Figure 18). Des charges négatives sont détectées dans tout le volume de l'isolant, tandis que des charges positives d'influence sont détectées sur chaque électrode. Des calculs effectués montrent que les charges totales d'influence sont bien dues à une combinaison de charges images (positives) dues aux charges négatives dans le volume, et de charges d'influence (positive à l'anode et négative à la cathode) dues aux processus dipolaires.



**Figure 20:** Profils de charge d'espace obtenus par la méthode PEA en condition de court-circuit à  $25^\circ\text{C}$  avant la rampe de température (PEA-1 sur la Figure 18), pour un PEN pré-polarisé a) à  $130^\circ\text{C}$  et b) à  $170^\circ\text{C}$ .

Il a donc été possible de montrer qu'avec des mesures de PEA, on peut avoir accès à des informations relatives à des processus de polarisation.

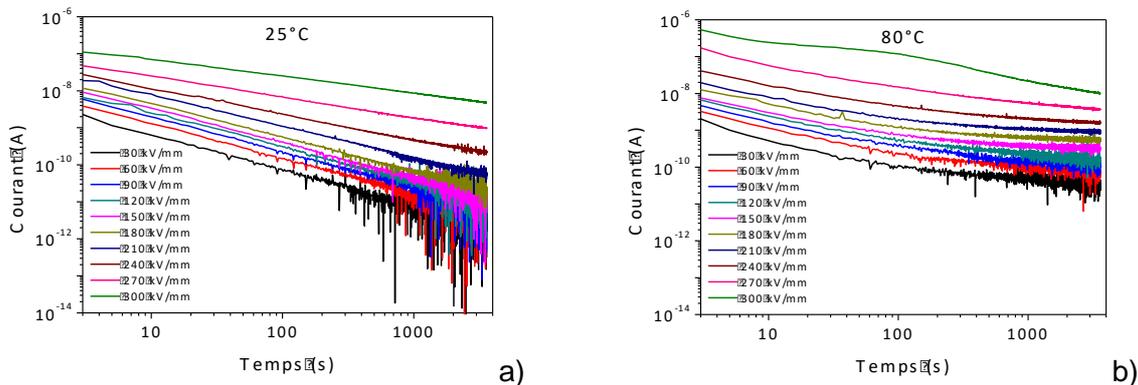
Pour conclure sur cette partie des mesures, les processus dipolaires et les charges d'espace négatives dans le volume sont figés lorsque l'on refroidit à l'ambiante le PEN après une polarisation à  $170^\circ\text{C}$ . Les processus dipolaires ne semblent être impliqués que dans les modes de relaxation  $\beta^*$  et  $\alpha$  enregistrés par TSDC. La présence de charges négatives dans les profils de PEA-1 à  $170^\circ\text{C}$ , non observée pour des profils de PEA-1 à  $130^\circ\text{C}$ , semble expliquer les différences observées pour les mesures TSDC à ces deux températures. Plus précisément, le pic  $\rho$  semble être lié principalement à la présence de charges d'espace négatives dans le volume du diélectrique. D'autres travaux alliant mesures TSDC et mesures de charges d'espace ont permis de lier définitivement le pic  $\rho$  à des charges piégées dans le volume [P- 17]. Par contre, celles-ci peuvent avoir été piégées du fait de changement dans la structure chimique du matériau, pièges qui n'existent pas pour une polarisation à température inférieure.

Des mesures de courant de conduction ont aussi été effectuées sur du PEN. Le protocole de mesure pour du PEN  $25\ \mu\text{m}$  à une température fixe est le suivant: le champ électrique est augmenté de 30 à  $300\ \text{kV/mm}$  (valeur proche de celle de claquage), par pas de  $30\ \text{kV/mm}$ . Pour chaque valeur du champ électrique appliqué, l'échantillon est polarisé pendant une heure puis dépolarisé pendant une heure, avant l'application d'un champ électrique supérieur. Pour chaque température, un nouvel échantillon est utilisé. Les résultats sont

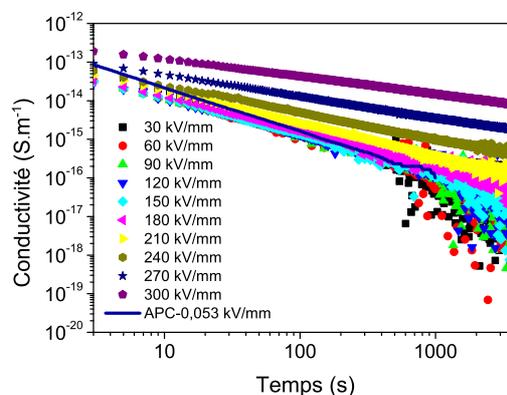
présentés à la Figure 21a) pour des mesures à température ambiante, et à la Figure 21b) pour des mesures à 80°C.

Aux faibles températures (<50°C), lorsque les échantillons sont soumis à des champs électriques faibles, les courants varient linéairement avec le temps en échelle logarithmique, et peuvent donc être dus à de la polarisation d'orientation. Cette hypothèse a été confirmée en comparant ces courants à des mesures de courants à champs faibles (mesure APC - Alternate Polarization Current [92]), où seule la polarisation est mesurée (Figure 22). On peut notamment voir que pour des champs inférieurs à 180 kV/mm à T=25°C, les courbes de courant normalisé sont confondues avec la courbe de courant normalisé APC, i.e. à ces champs, les processus polaires sont dominants.

Les courants à plus hautes températures ou sous forts champs électriques révèlent un changement de pente, qui indique un changement de processus à l'origine du courant (mécanismes polaires -> mécanismes de conduction). Pour des températures de 70, 80 et 90°C et un champ électrique de 300 kV/mm, un pic de courant est observé. Ce phénomène a été aussi observé par plusieurs auteurs pour plusieurs matériaux, tels que le LDPE [93], le HDPE [94], le PET [95,96] ou le PEN [97]. Une même conclusion a été proposée par tous les auteurs : l'apparition du pic de courant est liée à la charge d'espace. Cependant, la nature de ces charges (ions ou électrons) n'est pas connue.



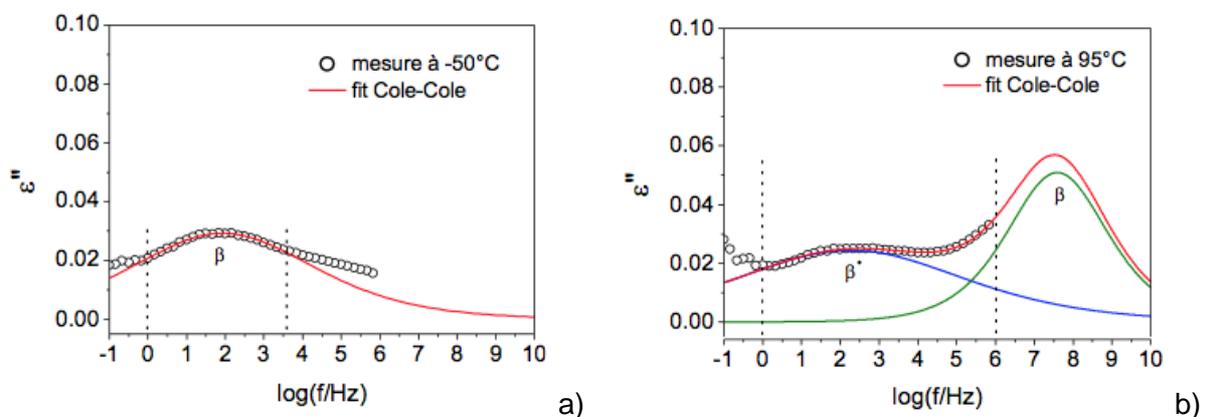
**Figure 21:** Courants de polarisation à champ fort pour différents champs à a) T=25°C et b) T=80°C.



**Figure 22:** Comparaison de la conductivité à champ faible (APC) et à champs forts en fonction du temps pour une température de 25°C, sur du PEN.

### E.3.b) Implémentation de la polarisation dans un modèle de transport de charges

Les résultats précédents montrent que les processus de polarisation doivent être pris en compte dans les modèles de transport, et que ceux-ci vont avoir un poids non négligeable en fonction du champ et de la température auxquels le matériau est soumis. Ces phénomènes de polarisation peuvent être modélisés en tenant compte de la variation de la permittivité en fonction de la fréquence/temps de sollicitation et de la température. Cette variation de la permittivité peut être caractérisée expérimentalement soit dans le domaine temporel (mesures de courant de polarisation/dépolarisation par exemple), soit dans le domaine fréquentiel (mesures de spectroscopie diélectrique). Nous avons choisi cette seconde possibilité. La variation de la permittivité a été mesurée par des mesures de spectroscopie diélectrique en fonction de la fréquence à différentes températures. A partir de la mesure de spectroscopie diélectrique fournissant la permittivité dans le domaine fréquentiel, l'objectif est d'obtenir la variation de la permittivité dans le domaine temporel, les modèles de transport étant développés dans le domaine temporel. Ceci a été effectué à l'aide d'une transformée de Fourier inverse (iFFT) du domaine fréquentiel vers le domaine temporel. Cependant, la transformée de Fourier inverse a besoin d'une permittivité échantillonnable en fréquence tandis que celle qui est obtenue par spectroscopie diélectrique est discrétisée. Il faut donc au préalable modéliser la permittivité mesurée (réelle et imaginaire) pour avoir une permittivité continue et re-échantillonnable en fréquence. Ceci a été effectué à l'aide de fonctions Cole-Cole pour les processus de relaxation  $\beta$ ,  $\beta^*$ , et  $\alpha$  observés expérimentalement. Pour chacune de ces fonctions, 3 paramètres doivent être ajustés, tous fonction de la température. Cela implique pour l'ensemble des relaxations 9 paramètres à ajuster. En utilisant une procédure d'extrapolation allant des basses aux hautes températures, il est possible d'obtenir les paramètres d'approximation pour les relaxations présentes dans la fenêtre de mesure. Un exemple de résultat est donné à la Figure 23a) pour la relaxation  $\beta$  seule, qui apparaît à température basse (-80 à -20°C) et pour une température où les relaxations  $\beta$  et  $\beta^*$  apparaissent ensemble (Figure 23b) [CNP-3].



**Figure 23.** Mesure et fit de la permittivité imaginaire vs. fréquence à a)  $-50^\circ\text{C}$  où la relaxation  $\beta$  apparaît seule et b)  $95^\circ\text{C}$ , où  $\beta$  et  $\beta^*$  apparaissent ensemble.

Une fois la permittivité obtenue dans le domaine temporel, des simulations de transport de charges pour des valeurs de champs où seule la polarisation est observée ont été effectuées. Pour cela, le modèle à deux niveaux de pièges a été utilisé, car plus facile à implémenter que le modèle à distribution exponentielle de pièges. La prise en compte de la variation de la permittivité intervient dans l'équation de calcul du champ électrique et du courant externe notamment. Les équations qui régissent maintenant le modèle sont les suivantes:

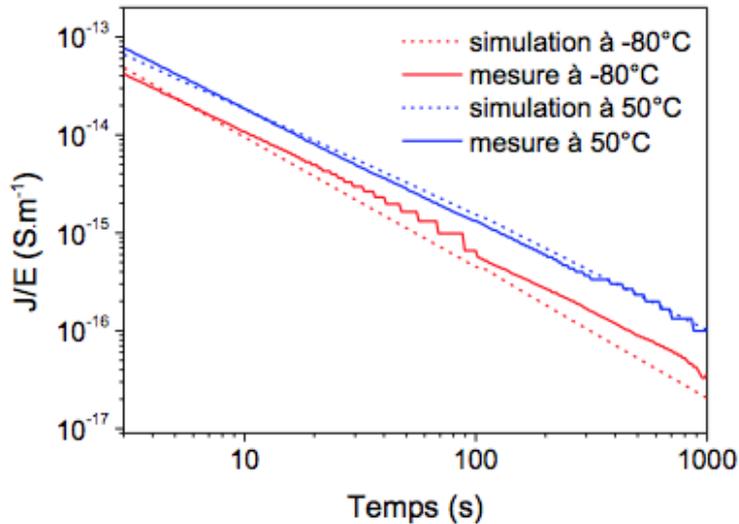
$$\frac{\partial D(x,t)}{\partial x} = \rho(x,t) \quad \text{équation de Maxwell-Gauss, remplace l'équation de Poisson} \quad E 20$$

$$J_T(x,t) = j_c(x,t) + \frac{\partial D(x,t)}{\partial t} \quad \text{équation de Maxwell-Ampère} \quad E 21$$

$$\text{avec } D(x,t) = \varepsilon_0 \varepsilon(t) * E(x,t) \quad E 22$$

où  $D(x,t)$  est le déplacement électrique,  $\varepsilon(t)$  la permittivité relative, qui peut varier en fonction du temps, et  $E(x,t)$  le champ électrique local. Dans l'équation E22, l'opérateur est un produit de convolution, ce qui veut dire que le déplacement électrique tient compte de tout l'historique du protocole expérimental, de 0 à  $t$ . Ainsi, le temps de calcul est rallongé par rapport au temps de calcul du simple modèle de transport de charges.

Des simulations ont ensuite été effectuées en utilisant l'architecture du modèle de transport de charges, mais en calculant le courant total comme étant uniquement lié au déplacement électrique et non à un courant de conduction, qui lui est nul. Ces simulations sont ensuite comparées à des mesures de courant à champ faible (APC). Les résultats (Figure 24) montrent que la prise en compte de la polarisation dans le modèle de transport de charges permet d'obtenir une bonne adéquation entre simulation et mesure, sur toute une gamme de température allant de  $-80$  à  $50^\circ\text{C}$ , et pour des champs pour lesquels seule la polarisation rentre en jeu dans les valeurs de courant [P- 22].



**Figure 24.** Comparaison des courants mesurés et simulés par le modèle de transport de charges où les phénomènes dipolaires ont été implémentés.

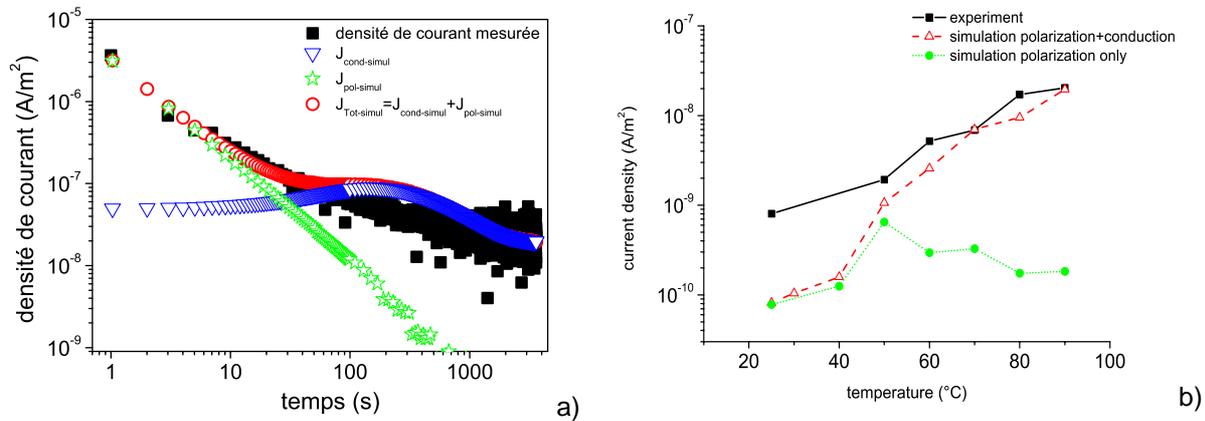
Il est à noter que le même protocole a quand même été appliqué à du LDPE, afin de voir si la méthode pouvait être validée pour différents matériaux isolants. Il a été difficile d'obtenir des mesures de spectroscopie diélectrique correctes, tant les pertes diélectriques dans le LDPE sont faibles. Nous avons exploité des données de spectroscopie d'impédance sur le LDPE issues de la littérature récente [98], et le protocole de transformée de Fourier inverse a ensuite été appliqué. Cependant, la comparaison entre les valeurs de courants expérimentales mesurées par APC et les valeurs provenant du modèle et des données fréquentielles montrent au minimum une décade de différence [CPI- 44]. Ceci semble montrer que la méthode que nous avons mise au point pour appréhender les processus polaires doit encore être améliorée (notamment la fiabilité des mesures), et avant tout validée pour d'autres matériaux plus polaires que le LDPE, qui semble être un cas particulier.

### E.3.c) Validation du modèle à deux niveaux de pièges pour le PEN

Des mesures de charges d'espace, de courant, et d'électroluminescence ont été effectuées afin de caractériser les mécanismes de génération et de transport de charges dans du PEN avant de le modéliser. Grâce à cette phase de caractérisation, il a ensuite été possible de paramétrer le modèle afin d'obtenir des résultats de simulation comparables aux mesures. Le modèle de transport de charges, tenant compte des phénomènes de polarisation, a été utilisé pour reproduire le courant mesuré à un champ de 30 kV/mm pour différentes températures (de 25 à 90°C), où la polarisation et la conduction jouent un rôle. La Figure 25a) montre la comparaison des densités de courant mesurées et simulées pour un champ électrique de 30 kV/mm et une température de 90°C [P- 26]. Le modèle est en mesure de reproduire la forme du courant mesuré, et ce quel que soit le temps de mesure. La Figure 25b) présente le même type de résultat mais pour des températures différentes.

Pour des températures basses (<50°C), le modèle n'est pas capable de reproduire correctement les valeurs quantitatives de l'expérience.

Par contre, pour des températures plus élevées, où la conduction semble être dominante par rapport à la polarisation, le modèle reproduit correctement les valeurs de courant.



**Figure 25:** Comparaison de la densité de courant mesurée et simulée pour un PEN a) en fonction du temps, pour un champ électrique de 30 kV/mm et T=90°C, et b) en fonction de la température, pour un champ électrique appliqué de 30 kV/mm.

Malgré la cohérence des résultats de simulation avec l'expérience, de nombreux problèmes et questions restent encore à régler afin d'être confiants sur les hypothèses physiques prises en compte et donc sur les résultats du modèle. Du point de vue numérique, nous avons vu les limites de nos modèles tels qu'ils sont développés, puisque ceux-ci sont des modèles explicites, et qui nécessitent de suivre la règle de CFL. Or, pour des champs électriques et des températures aussi élevées, le pas de temps de calcul devient infiniment petit au regard d'une mesure d'une heure par exemple. C'est d'autant plus le cas qu'il faut, pour chaque pas de temps, recalculer la contribution de la polarisation. Ces questions de temps de calcul doivent être résolues pour traiter la réponse transitoire de matériaux polaires par la méthodologie développée jusqu'ici, à fortiori si on s'intéresse au domaine des forts champs/hautes températures où la cinétique des phénomènes est fortement accélérée. D'un point de vue des hypothèses physiques, il a été difficile de trouver des valeurs de paramètres en se basant sur les mesures à disposition. Il est possible que le transport de charges dans le PEN ne se fasse pas uniquement par des charges électroniques, mais que des ions soient présents. Ceci est aussi une piste de développement dans le futur.

## F. APPLICATION DES MODELES AUX CABLES HVDC

Depuis mes travaux de thèse, j'ai toujours participé aux travaux de recherches menés dans l'équipe sur les isolants de câbles HVDC terrestres ou plus récemment aéronautiques, même si ces travaux étaient/sont pour la plupart essentiellement expérimentaux. Je ne présenterai pas ces travaux en totalité mais décrirai dans une partie introductive les recherches récentes sur le sujet dans l'équipe, et je m'attarderai plus sur la partie modélisation dans les câbles haute tension, modélisation macroscopique et fluide.

### **F.1. MATERIAUX DE CABLES A ISOLATION SYNTHETIQUE POUR DES APPLICATIONS AU TRANSPORT D'ENERGIE HVDC**

La montée en puissance des liaisons HVDC à isolation synthétique (XLPE - polyéthylène réticulé) par rapport aux liaisons HVAC (courant alternatif) dans le transport de l'énergie terrestre implique une connaissance accrue des matériaux constitutifs de ces câbles. Ces matériaux doivent être 'qualifiés' afin d'assurer leur fonction d'isolation électrique et ainsi assurer la fiabilité maximale du système pendant toute sa durée d'utilisation. Cependant, il y a encore peu de recul sur ces technologies synthétiques utilisées sous haute tension continue. La demande est grandissante pour la mise en place d'une méthodologie pour le choix de ces matériaux ainsi que de critères de qualification. Cette méthodologie pour la sélection des matériaux porte sur de nombreux points, qui vont de la mise en oeuvre des matériaux à l'échelle des laboratoires, aux protocoles de mesures ainsi qu'à la recherche de variables caractéristiques pour chaque matériau.

De récentes études, notamment dans notre équipe, ont montré la nécessité de contrôler la mise en oeuvre et la préparation des échantillons avant mesure [CPI- 42,P- 23,P- 24]. Les échantillons LDPE ou XLPE mis en oeuvre au laboratoire sont souvent des échantillons plans, moulés par presse hydraulique avec des matériaux de revêtements différents. Ces matériaux de revêtements ont un impact non négligeable sur les propriétés diélectriques du matériau [CPI- 42]. De même, le 'recuit', le traitement thermique ou l'historique du matériau ayant déjà subi un précédent protocole thermique, font qu'il ne se comporte pas de la même manière qu'un échantillon 'vierge' de tout traitement [P- 24]. L'échantillon ayant déjà subi un traitement thermique aura tendance à accumuler moins de charges, le traitement thermique entraînant une diminution par 'dégazage' des sous-produits de réticulation. Ce problème de dégazage peut aussi se retrouver lors de mesures de charges d'espace. Un traitement thermique sur un câble full-size ne viendra pas enlever la totalité des sous-produits de réticulation, alors que le même traitement thermique sur un échantillon plan ou un câble maquette, beaucoup plus fin par rapport au câble réel, produira un dégazage 'total' de l'échantillon, celui-ci n'étant plus similaire à l'échantillon full-size [P- 23].

Des critères de sélection des matériaux polyéthylène ont été proposés afin de sélectionner les meilleurs matériaux XLPE [P- 23]: le facteur d'intensification du champ ou FEF, qui permet d'observer l'augmentation ou la diminution du champ électrique dans le matériau, ou la densité de charge intégrée, qui permet de quantifier la charge accumulée par le matériau. Ces grandeurs peuvent être obtenues grâce à des mesures de charges

d'espace. Des mesures de charges d'espace ont été effectuées pour des champs appliqués allant de 10 à 40 kV/mm sur différents matériaux: un LDPE de référence, un LDPE trempé dans de l'acétophénone (sous-produit de réticulation), un XLPE dédié à un câble HVAC, un XLPE HVDC, et un second XLPE HVDC ne contenant pas de sous-produits de réticulation. Les comparaisons entre les grandeurs caractéristiques (FEF et charge intégrée majoritairement), ont montré l'impact négatif des sous-produits de réticulation, ce qui est en accord avec la littérature.

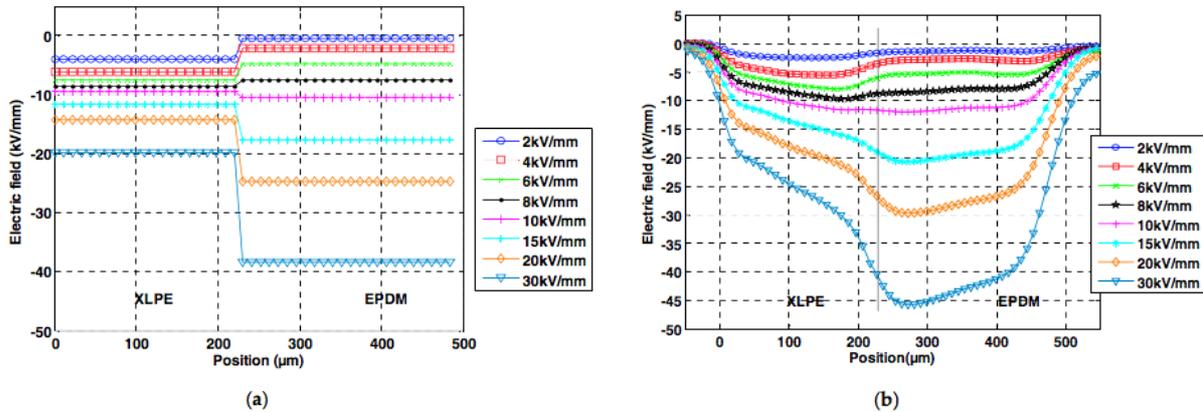
Ces travaux soulignent l'intérêt de faire évoluer les modèles vers des matériaux plus complexes en tenant compte de tels produits issus de la réticulation sur le transport de charges électroniques et ioniques dans le matériau. Ces évolutions seront évoquées dans la partie perspectives.

## **F.2. MODELE MACROSCOPIQUE**

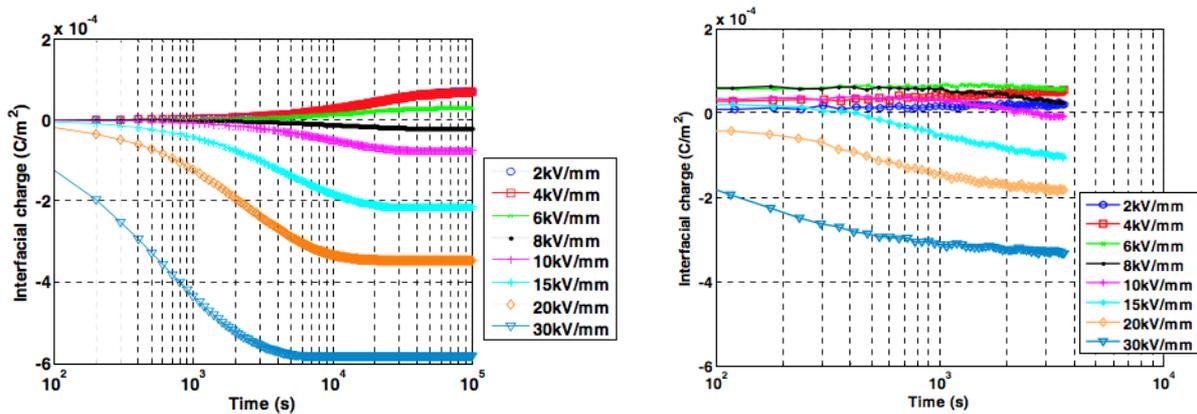
L'équipe DSF a acquis un savoir-faire sur la mesure et la modélisation du comportement des matériaux organiques solides utilisés comme isolant électrique dans le transport de l'énergie haute tension en courant continu (HVDC ou HTCC). Ces matériaux isolants, souvent utilisés en bicouche ou multicouches, ont des propriétés électriques non linéaires, qui impliquent des distributions en champ électrique différentes en fonction de grandeurs extérieures telles que la tension appliquée et la température. Afin d'avoir accès à ces distributions en champ dans les matériaux, le comportement de la conductivité de plusieurs matériaux de câbles en fonction de la température et du champ électrique a été modélisé, et ce pour des plaques ou des modèles de câble (câbles maquettes). Cette approche macroscopique a été développée lors de la thèse de T.T.N. Vu, sous COMSOL Multiphysics®, un logiciel commercial utilisant les éléments finis. L'approche de modélisation a été validée par comparaison des prédictions du modèle avec des données expérimentales, et ce pour des champs appliqués et/ou des températures différentes (Figure 26) et pour un bicouche plan polyéthylène réticulé (XLPE) et un élastomère EPDM - Ethylene Propylene Diene Monomer-, utilisé dans les jonctions de câbles [P-6]. Cependant, plus le champ électrique est élevé, moins le modèle est capable de reproduire la non-uniformité des champs électriques au sein d'un même matériau. Ceci semble dû à la présence de charges d'espace, phénomène physique qui n'est pas pris en compte dans la modélisation macroscopique, mais qui peut être modélisé par des modèles fluides.

Toujours avec le modèle macroscopique, la charge interfaciale a été calculée pour des matériaux bicouches, grâce à la théorie de Maxwell-Wagner-Sillars. Les données du modèle ont été confrontées comme précédemment à des données expérimentales de mesure de charge d'espace pour un bicouche plan XLPE/EPDM, et ce pour différents champs et différentes températures [P- 20]. Le modèle macroscopique développé sur la base de la variation de la conductivité en fonction du champ électrique et de la température, conductivité mesurée expérimentalement, prédit une charge d'interface entre les deux matériaux de câbles positives pour des champs électriques faibles (i.e. <8 kV/mm), puis un

changement de signe de cette charge interfaciale. La charge négative calculée devient plus importante plus le champ électrique est élevé (Figure 27a). Les mêmes observations ont été



**Figure 26.** Distributions en champ électrique obtenues a) par la modélisation macroscopique, et b) par la mesure (PEA) pour une heure de polarisation pour un bicouche XLPE/EPDM.



**Figure 27.** Charge interfaciale en fonction du temps pour différents champs électriques à  $T=40^{\circ}\text{C}$  obtenus a) par la modélisation macroscopique, et b) par la mesure (PEA) pour un bicouche XLPE/EPDM.

effectuées sur la charge mesurée, i.e. une charge d'abord positive, qui devient rapidement négative et de plus en plus importante plus le champ électrique est élevé (Figure 27b).

De même, des simulations sur des câbles maquettes, i.e. en géométrie cylindrique avec des dimensions plus faibles que les câbles réels, ont été effectuées à l'aide du modèle macroscopique. Ces simulations permettent de se rapprocher de l'application réelle, où il existe un gradient de champ électrique ainsi qu'un gradient de température, du aux pertes par effet Joule dans le conducteur. Le modèle macroscopique développé pour un modèle de câble tient aussi compte de l'aspect thermique. Les résultats du modèle ont aussi été confrontés à des mesures de conductivité sur câbles, avec une bonne adéquation entre mesure et simulation [99].

### F.3. MODELISATION FLUIDE POUR UNE GEOMETRIE CYLINDRIQUE

Le modèle fluide de transport de charges à deux niveaux de pièges a été utilisé afin de simuler le comportement de la charge d'espace dans un polyéthylène basse densité (LDPE) pour une géométrie cylindrique, i.e. un câble où le champ électrique et la température ne sont pas uniformes [P- 21]. Le même type d'étude avait déjà été initié lors du projet européen HVDC avec le modèle à distribution exponentielle de pièges pour un câble multicouche [CPI- 7].

Le courant traversant le conducteur du câble produit une augmentation de la température proche de l'électrode interne, ce qui conduit à un gradient de température dans le matériau. Ce gradient de température est calculé grâce à l'équation suivante:

$$T(r) = T(r_i) - \frac{\ln \frac{r_0}{r_i} \frac{\rho}{k_B} (T(r_i) - T(r_o))}{\ln \frac{r_0}{r_i} \frac{\rho}{k_B}} \quad \text{E 23}$$

où  $T(r_i)$  et  $T(r_o)$  sont les températures à l'électrode interne et externe, respectivement, et  $r$  est le rayon du câble.

Je rappelle aussi brièvement les équations liées aux phénomènes physiques impactés par la non-uniformité de la température et le champ électrique dans le matériau.

La mobilité est de type 'hopping', i.e. fonction du champ et de la température, pour chaque type de charge:

$$m_{eh}(r, t) = \frac{2d\eta}{E(r, t)} \exp \left[ -\frac{eW_{meh}}{k_B T(r)} \right] \sinh \left[ \frac{eE(r, t)d}{2k_B T(r)} \right] \quad \text{E 24}$$

où  $r$  est le rayon du câble.

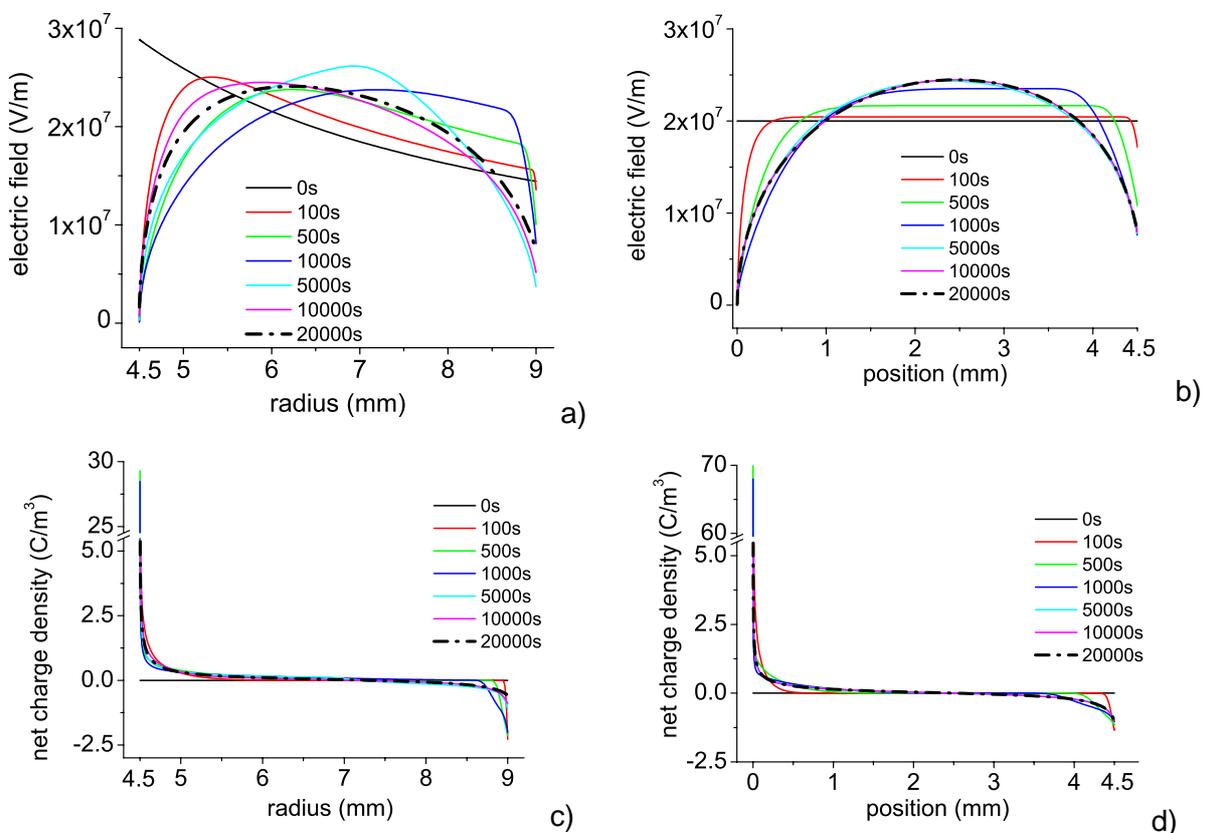
La recombinaison entre charges positives et négatives est de type Langevin, i.e. fonction de la mobilité des charges, et donc fonction de la température et du champ électrique. Par exemple, le coefficient de recombinaison entre électrons mobiles et trous mobiles peut s'écrire:

$$S_{e\mu, h\mu}(r, t) = e \frac{\mu_e(r, t) + \mu_h(r, t)}{\epsilon_0 \epsilon_r} \quad \text{E 25}$$

Enfin, le dépiégeage des charges piégées dans des pièges profonds est activé thermiquement, et est de la forme:

$$D_{eh}(r, t) = n \cdot \exp\left\{ \frac{e - eW_{tr,thr}}{k_B T(r)} \right\}$$

Une comparaison entre une géométrie plane (champ uniforme) et une géométrie cylindrique (champ non-uniforme), pour une même température, montre déjà l'impact de la non-uniformité du champ électrique sur la charge d'espace simulée (Figure 28c et d). En effet, à l'état stationnaire, les densités de charges semblent globalement similaires, ce qui est surprenant car les champs électriques à t=0 sont différents. Cependant, les valeurs des distributions en champ électrique sont là aussi comparables, comme si la charge d'espace dans le matériau avait contrebalancé la distorsion de champ due à la géométrie.

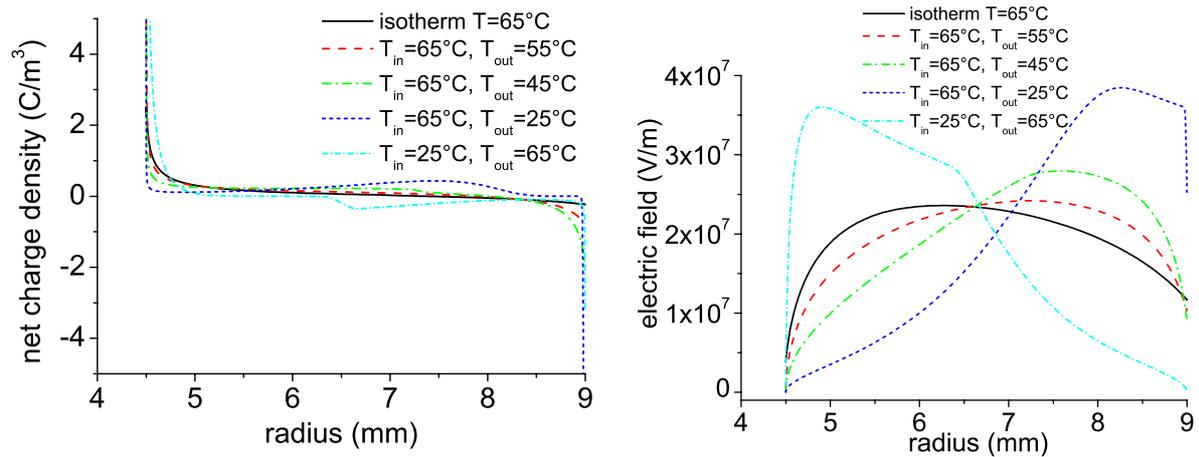


**Figure 28.** Distribution de champ simulé en fonction de l'épaisseur de l'isolant LDPE pour différent temps de polarisation pour a) une géométrie cylindrique d'un câble moyenne tension et b) une géométrie plane. Densité nette de charges simulée correspondant aux champs électriques précédents pour c) une géométrie cylindrique et d) une géométrie plane.  $V=90kV$ ,  $T=65^\circ C$ .

L'impact du gradient de température a aussi été étudié. En effet, la température interne a été fixée à  $65^\circ C$ , et on a fait varier la température externe de  $25$  à  $65^\circ C$ , soit un gradient de température allant de  $0$  à  $40^\circ C$ , ce qui est largement supérieur à ce qui est rencontré dans la réalité.

Lorsqu'un gradient de température est ajouté au gradient de champ, ce qui est le cas dans la réalité pour ce type d'objet, il semble que celui-ci domine le comportement de la charge

d'espace et donc la distribution en champ électrique. En effet, en jouant sur les gradients de températures uniquement, il est possible de changer complètement le signe de la charge dominante dans l'isolant, passant d'une densité de charges de plus en plus grande et positive plus le gradient de température est grand entre le conducteur et l'électrode extérieure (Figure 29a). Il en est de même pour le champ électrique, qui est maximal proche du semi-conducteur externe, et qui est de plus en plus grand plus le gradient de température augmente (Figure 29b).



**Figure 29.** a) Densité nette de charge et b) champ électrique simulés en fonction du rayon du câble pour différents gradients de température à l'état stationnaire ( $t=50000s$ ) pour  $V=90kV$ .

Ce modèle de transport de charge est cependant dédié à des matériaux LDPE. Il permet notamment de comprendre grâce à la simulation les processus dominants (gradient thermique par rapport à gradient de champ) pour une géométrie réelle. Il faut encore développer les connaissances sur les mécanismes physiques dans des matériaux réels, i.e. des PE réticulés, pour que ces modèles puissent prédire correctement le comportement des charges pour les applications HVDC.

## G. APPLICATION DES MODELES AU DOMAINE DU SPATIAL

La génération de charges aux interfaces reste un des points clés dans la description et la modélisation du transport de charges dans les isolants solides. Or, il est encore actuellement difficile de décrire cette génération de manière correcte. Afin de s'affranchir de cette génération aux interfaces, nous avons pensé utiliser un faisceau d'électrons afin de générer la charge dans le matériau. L'utilisation d'un faisceau d'électrons permet de déposer la charge de manière contrôlée, que ce soit dans la profondeur ou en quantité. Ceci nous permettrait ainsi de mieux appréhender les paramètres liés au transport, et poursuivre ainsi l'optimisation de la paramétrisation de nos modèles. Cette démarche a d'ailleurs été facilitée par la mise en place dans l'équipe d'une enceinte d'irradiation par faisceau d'électrons, Matspace, qui a été financée par une ANR JCJC MATSPACE (2007-2010), qui a permis la pérennisation de cet axe scientifique [100]. Ce banc de mesures est unique au monde puisqu'il permet de mesurer la charge d'espace par les méthodes PEA et LMM - Laser Induced Modulation Method-, mesure acoustique et thermique respectivement, pendant et après irradiation sous faisceau d'électrons (de 10 à 100 KeV). Des mesures de potentiels de surface, de courant (face avant et face arrière) ainsi que des mesures de luminescence, viennent ou viendront compléter la caractérisation in situ. Je ne présenterai pas ici le développement de l'instrumentation dédiée à Matspace en potentiel flottant. Je présenterai uniquement les protocoles expérimentaux qui ont aussi été utilisés pour la modélisation, ainsi que la comparaison des résultats de simulation avec des mesures de charge d'espace sous irradiation notamment.

L'irradiation par faisceau d'électrons implique de nombreuses interactions avec la matière, ce qui entraîne d'une part le dépôt d'électrons, et d'autre part le dépôt de dose (énergie déposée par unité de masse du matériau), tous deux fonction du matériau irradié, du courant de faisceau ainsi que de l'énergie d'irradiation. Les caractéristiques de ces deux grandeurs peuvent être connues et modélisées en fonction du volume du matériau, et des caractéristiques du faisceau d'électrons. Ces caractéristiques sont nécessaires pour le développement des modèles de transport. En effet, outre les mécanismes physiques tels que le piégeage, le dépiégeage, la recombinaison, pris en compte par le modèle à deux niveaux de pièges, celui-ci doit aussi prendre en compte les processus physiques spécifiques à l'environnement spatial, décrits par le modèle GR (Geminate-Recombination) [101]:

- une génération de charges par implantation directe dans le volume, due aux différents rayonnements
- une conductivité induite par irradiation correspondant à la génération de paires électron/trou dans la zone irradiée.

Ces 2 processus sont pris en compte dans l'équation de continuité qui s'écrit maintenant:

- Pour les électrons libres :

$$S_{e\mu}(x, t) = -e \frac{\partial J_0(x, t)}{\partial x} + G(x, t) - B_e \cdot n_{e\mu}(x, t) \left(1 - \frac{n_{et}(x, t)}{n_{e0et}}\right) + D_e(x, t) n_{et}(x, t) - S_1(x, t) n_{e\mu}(x, t) n_{ht}(x, t) - S_3(x, t) n_{e\mu}(x, t) n_{h\mu}(x, t) \quad E 27$$

- Pour les électrons piégés :

$$S_{et}(x, t) = B_e \cdot n_{e\mu}(x, t) \left(1 - \frac{n_{et}(x, t)}{n_{e0et}}\right) - D_e(x, t) n_{et}(x, t) - S_0(x, t) n_{et}(x, t) n_{ht}(x, t) - S_2(x, t) n_{et}(x, t) n_{h\mu}(x, t) \quad E 28$$

- Pour les trous libres :

$$S_{h\mu}(x, t) = G(x, t) - B_h \cdot n_{h\mu}(x, t) \left(1 - \frac{n_{ht}(x, t)}{n_{h0ht}}\right) + D_h(x, t) n_{ht}(x, t) - S_2(x, t) n_{h\mu}(x, t) n_{et}(x, t) - S_3(x, t) n_{e\mu}(x, t) n_{h\mu}(x, t) \quad E 29$$

- Pour les trous piégés :

$$S_{ht}(x, t) = B_h \cdot n_{h\mu}(x, t) \left(1 - \frac{n_{ht}(x, t)}{n_{h0ht}}\right) - D_h(x, t) n_{ht}(x, t) - S_0(x, t) n_{ht}(x, t) n_{et}(x, t) - S_1(x, t) n_{e\mu}(x, t) n_{ht}(x, t) \quad E 30$$

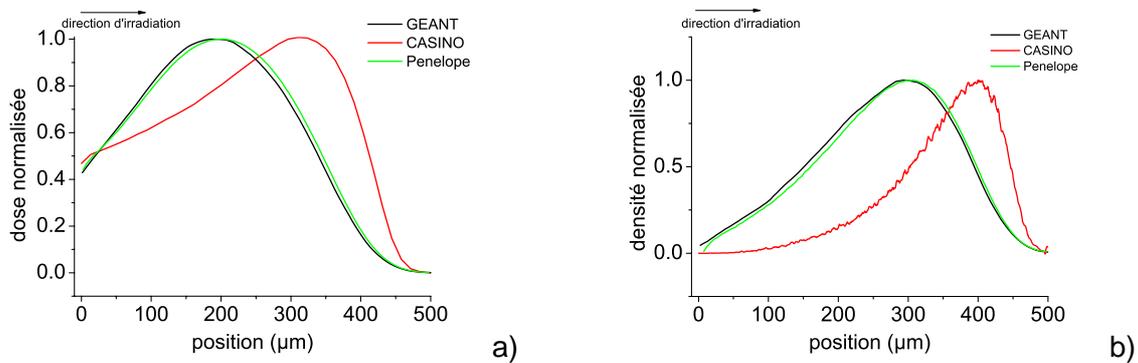
Le terme G représente la génération de paires électron/trou, et est calculé grâce à la dose déposée :

$$G(x) = G_0 \cdot D(x) \quad E 31$$

où  $G_0$  est le coefficient de génération de paires électron/trou et  $D(x)$  est ici la dose normalisée, fonction de l'épaisseur du diélectrique. Là aussi le calcul de la génération de paires électron/trou en fonction de l'épaisseur du matériau fait intervenir des données de dose déposée.

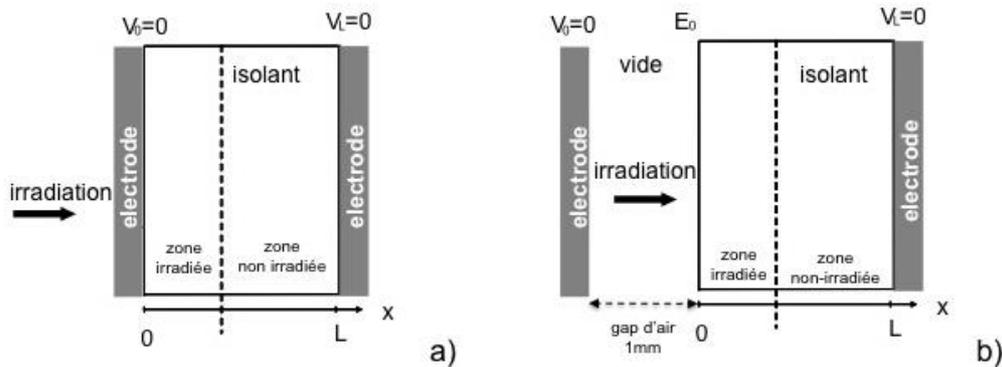
Pour prendre en compte le(s) mécanisme(s) d'irradiation dans les modèles de transport de charge, il est nécessaire de s'appuyer sur des données de base (répartition de la dose et de la charge déposée en fonction de l'épaisseur du diélectrique) issues de modèles particuliers de type Monte Carlo. De nombreux codes existent permettant d'obtenir ces informations. On peut notamment citer Casino [102], MNCP - Monte-Carlo N-Particules [103], GEANT4 développé par le CERN [104], ou encore Penelope - PEnetration and EnergyLOss of Positrons and Electrons in matter- [105] notamment utilisé par une l'équipe PRHE du Laplace. Ces différents modèles permettent d'obtenir des données de base avec une sensibilité différente, et il est intéressant de connaître l'erreur faite sur les données d'entrée du modèle de transport, car celles-ci engendrent elles-aussi des erreurs sur les résultats de simulation du comportement de la charge. Un exemple de dose déposée et de densité d'électrons déposés, calculés par 3 codes différents, en fonction de l'épaisseur du

diélectrique est présenté à la Figure 30 pour un LDPE de 500  $\mu\text{m}$  irradié perpendiculairement à la surface de l'échantillon, par un faisceau d'électrons mono-énergétique de 200 keV et un courant de faisceau de 50  $\text{pA}\cdot\text{cm}^{-2}$ . On peut notamment voir que les codes Penelope et GEANT4 présentent des données similaires, ce qui n'est pas le cas de Casino. Nous avons choisi par la suite d'utiliser Penelope.



**Figure 30.** a) Dose déposée et b) densité de charges déposée calculés par les codes Casino, GEANT4 et Penelope, en fonction de l'épaisseur du diélectrique, pour un film de LDPE de 500  $\mu\text{m}$ , irradié par un faisceau d'électrons d'énergie 200 KeV.

Dans le cadre d'une collaboration CNES – ONERA – LAPLACE (2007-2011), un modèle de transport de charges a été développé pour prévoir l'état de charge de l'isolant au cours des cycles de contrainte, et de prédire l'état de dégradation des matériaux sous environnement spatial agressif. Ce modèle a été développé entre autre pour du LDPE d'épaisseur 500  $\mu\text{m}$ , irradié perpendiculairement à la surface de l'échantillon, par un faisceau d'électrons mono-énergétique de 200 keV et un courant de faisceau de 50  $\text{pA}\cdot\text{cm}^{-2}$ . Les données de dose et de densité déposées sont celles présentées à la Figure 30. Les mesures de charge d'espace (PEA) auxquelles les résultats de simulation seront comparés ont été effectuées durant l'irradiation (30 min max) et durant la relaxation (maximum un jour) et ce pour deux configurations: i/ une configuration 'court-circuit', où l'échantillon est métallisé sur les deux faces, et où les électrodes sont toutes deux reliées à la masse (Figure 31a), et ii/ une configuration 'ouverte' où la face irradiée est à un potentiel flottant alors que la seconde face est à la masse (Figure 31b). Pour les deux configurations, l'irradiation vient de la gauche ( $x=0$ ). Les charges peuvent être injectées et extraites aux électrodes, selon le signe du champ électrique. Pour la configuration 'ouverte', l'injection/extraction est possible uniquement à l'électrode non-irradiée.



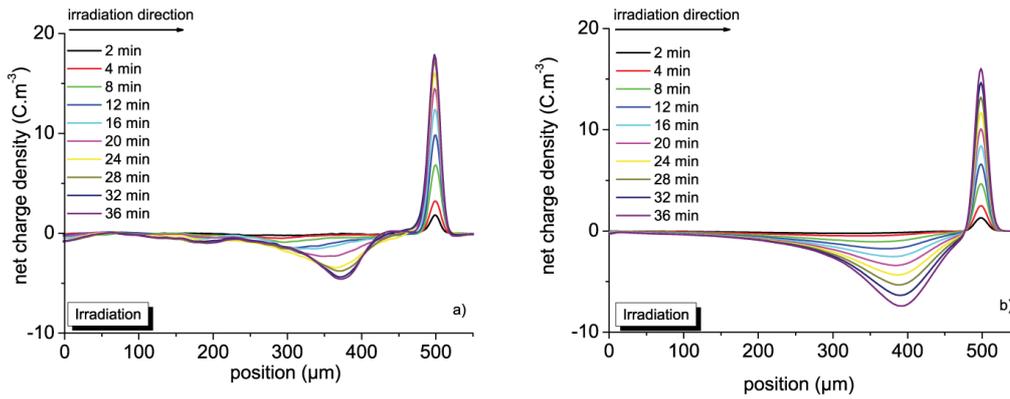
**Figure 31.** Schéma représentatif des configurations simulées pour le transport de charges dans un polymère irradié par faisceau d'électrons. a) configuration 'court-circuit' (i.e. électrodes à la masse), et b) configuration 'ouverte' (i.e. face irradiée en potentiel flottant, face non-irradiée à la masse).

Dans cette configuration 'ouverte', le modèle tient compte de l'épaisseur du gap d'air entre l'électrode et la surface irradiée, afin de calculer un champ électrique correct à cette interface.

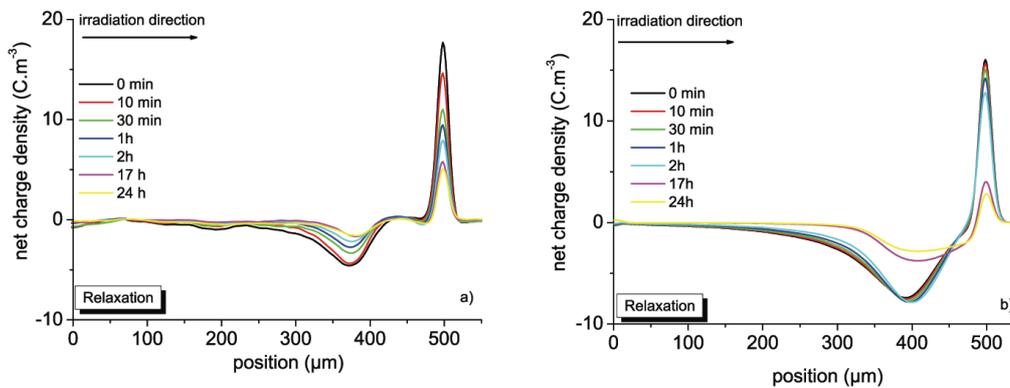
Les résultats des simulations sous irradiation sont comparés aux mesures de charge d'espace (PEA) en configuration 'ouverte' ou 'court circuit') développées spécialement pour l'irradiation. Les paramètres utilisés pour la validation du modèle sous irradiation ont été précédemment optimisés pour le même matériau pour des simulations sous contrainte continue [P- 4,P- 8]. Cependant, les coefficients de recombinaison, jusqu'ici constants, ont été remplacés par des coefficients de type Langevin. Ces coefficients sont maintenant fonction de la mobilité des différentes espèces.

Les résultats de simulation peuvent être comparés aux mesures, sous irradiation et en relaxation, pour une configuration PEA 'ouverte' ou 'court-circuit', et ce avec le même jeu de paramètres optimisés (cf Tableau 1) [P- 11]. Ces comparaisons entre mesures et simulations sont présentées pour une configuration PEA 'ouverte' sous irradiation à la Figure 32, et en relaxation à la Figure 33, et pour une configuration PEA 'court-circuit' sous irradiation à la Figure 34 et en relaxation à la Figure 35. Le modèle est globalement capable de reproduire la dynamique d'accumulation de charges négatives dans le matériau, ainsi que la position et la quantité de ces charges. La dynamique des charges en relaxation, quelle que soit la configuration, semble cependant plus régulière pour la modélisation que lors des mesures. Il est à noter que même si aucune charge positive n'est détectée dans les profils de charges, une densité de charges positives non négligeable est présente dans le diélectrique même pendant l'irradiation, venant notamment de la dissociation de paires électrons/trous.

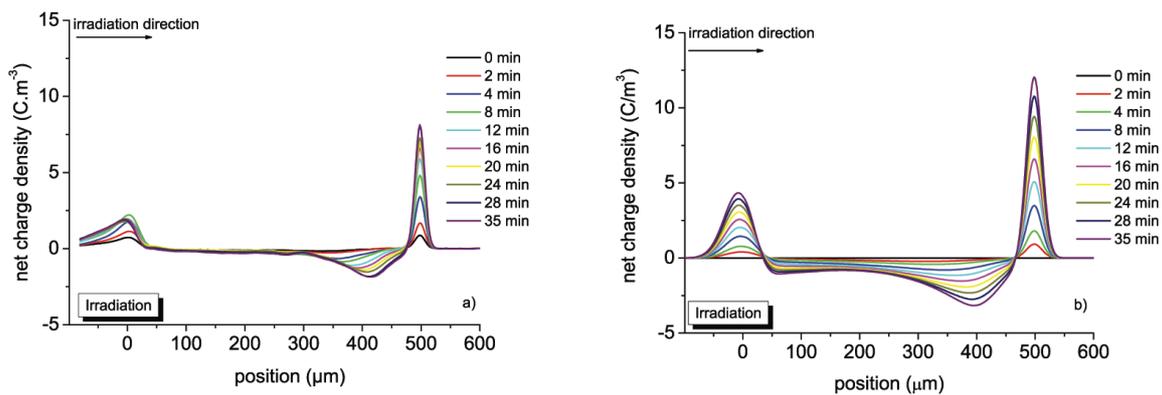
Pour du LDPE, il semble possible de paramétrer de manière unique le matériau, puisque le jeu de paramètres optimisés pour une configuration MIM et l'application de forts champs électriques peut être utilisé pour les mesures sous irradiation dans du LDPE. Il faut cependant faire remarquer que nous sommes ici dans une situation quasi idéale, car les échantillons de LDPE sont réalisés au laboratoire, à la demande, avec un processus de mise en oeuvre largement validé. Ce n'est et ne sera certainement pas le cas pour d'autres matériaux.



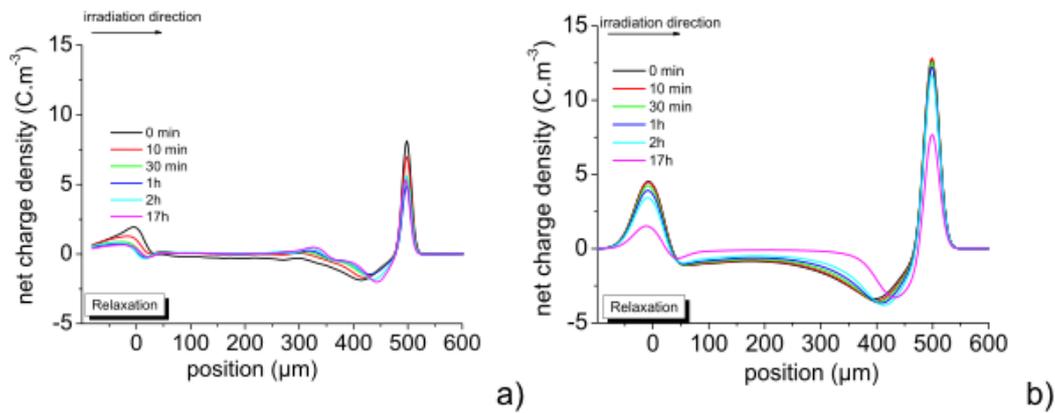
**Figure 32** : Profils de charges d'espace obtenus sur un LDPE de 500  $\mu\text{m}$  dans une configuration PEA 'ouverte', pour une irradiation de 36 min avec un faisceau d'électrons de 200 keV. a) mesure PEA, et b) simulation.



**Figure 33** : Profils de charges d'espace obtenus sur un LDPE de 500  $\mu\text{m}$  dans une configuration PEA 'ouverte' en relaxation, après une irradiation de 36 min avec un faisceau d'électrons de 200 keV. a) mesure PEA, et b) simulation.



**Figure 34** : Profils de charges d'espace obtenus sur un LDPE de 500  $\mu\text{m}$  dans une configuration PEA 'court-circuit', pour une irradiation de 36 min avec un faisceau d'électrons de 200 keV. a) mesure PEA, et b) simulation.



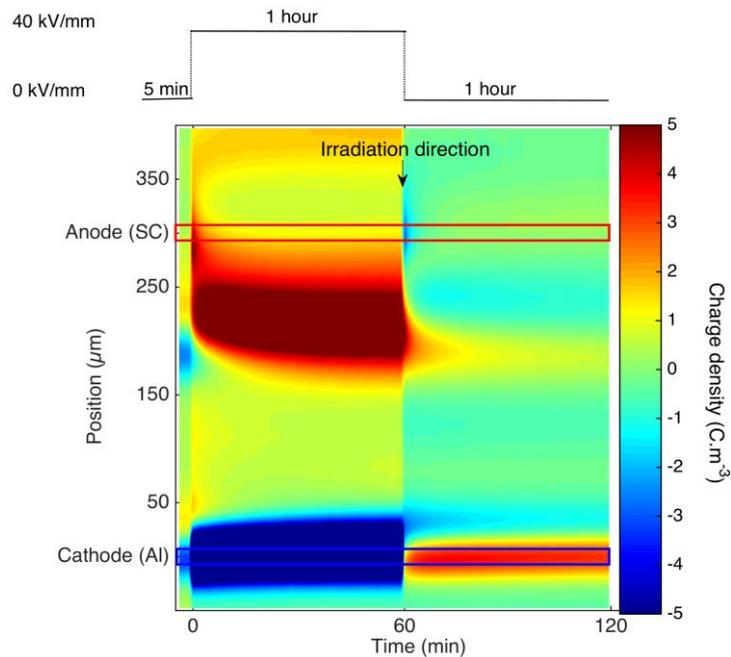
**Figure 35** : Profils de charges d'espace obtenus sur un LDPE de 500  $\mu\text{m}$  dans une configuration PEA 'court-circuit', en relaxation, après une irradiation de 36 min avec un faisceau d'électrons de 200 keV. a) mesure PEA, et b) simulation.

Le même modèle à deux niveaux de pièges a aussi été utilisé et validé pour des matériaux utilisés en environnement spatial, comme du PTFE (polytétrafluoroéthylène) [CPI-13].

Le développement de l'axe de recherches matériaux sous environnement chargeant a permis de mettre en avant l'existence de charges positives créées lors de l'irradiation par faisceau d'électrons. Ces travaux ont été effectués lors de la thèse de M. Banda [T- 5]. Des mesures de charges ex-situ, effectuées après irradiation, ont permis d'observer ces charges positives (Figure 36) en court circuit juste avant polarisation, et qui ont pour origine:

- la génération de paires électrons/trous pour les charges proches de la zone irradiée,
- l'injection de charges positives à l'électrode de masse, favorisée par le champ électrique local.

Ces travaux ont aussi montré le comportement particulier de la charge d'espace dans un LDPE préalablement irradié puis polarisé post-irradiation. En effet, un LDPE irradié à 80 keV par faisceau d'électrons pendant 10 min, puis sorti de l'enceinte Matspace et polarisé à 40 kV/mm, présente une grande quantité de charges, ici positives car la tension appliquée est positive, et ce dès l'application de la tension (Figure 36). Ces charges sont localisées uniquement dans la zone irradiée, et restent stables pendant toute la durée de la polarisation. Des mesures ont aussi été effectuées à différentes tensions (amplitude et signe), montrant toujours la même dynamique. Des mesures complémentaires ont été effectuées, de courant et de luminescences pour la caractérisation diélectrique, mais aussi des caractérisations physico-chimiques, afin de vérifier si ce comportement venait uniquement de la densité de charges déposée/créée, ou si le faisceau d'électrons avait endommagé la structure chimique du matériau, créant ainsi de nouveaux pièges. Malgré le nombre de mesures, il est encore difficile de conclure quant au vieillissement prématuré du matériau, même si des changements légers ont été observés expérimentalement [P- 27].



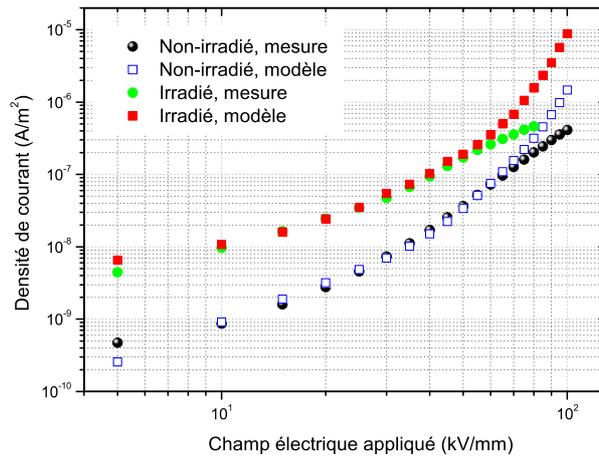
**Figure 36:** Cartographie de densité de charge nette pour un LDPE de 300 µm irradié par un faisceau d'électrons de 80keV pendant 10 min avec un courant de faisceau de 1 nA/cm<sup>2</sup>, mis en court-circuit pendant 5 min, polarisé ensuite pendant une heure à un champ électrique de 40 kV/mm, puis mis en court-circuit pendant une heure.

Une seconde partie de ce travail de thèse a porté sur la modélisation du transport de charges dans ces matériaux polarisés post-irradiation. Le modèle utilisé est le modèle à deux niveaux de pièges, tenant compte d'une mobilité de type hopping et de la recombinaison des charges de type Langevin. Dans un premier temps, le modèle de transport de charges, jusqu'à présent développé sous Fortran ou Matlab, a été développé sous COMSOL Multiphysics®. Un long travail de compréhension des schémas numériques et des conditions limites inhérentes aux modules choisis pour la modélisation multi-physique a été nécessaire, avant de mettre en place le modèle de transport de charges.

Le modèle a ensuite été utilisé pour les mêmes protocoles de mesures, i.e. sous irradiation pendant 10 min, puis polarisé en post-irradiation à l'extérieur de l'enceinte Matspace. La Figure 37 présente la comparaison entre mesure et simulation de densité de courants en fonction du champ électrique appliqué pour un matériau non irradié et un matériau irradié. Le modèle est capable de prédire le comportement du LDPE non irradié et irradié sur une large gamme de champ électrique appliqué. La comparaison entre modèle et expérience diverge pour des champs supérieurs à 70 kV/mm. Il faut cependant noter que les paramètres optimisés pour cette étude ne sont pas ceux du Tableau 1, qui n'ont pas permis de reproduire le comportement global du matériau sous irradiation. Il a été nécessaire d'optimiser les paramètres, notamment les paramètres liés au piégeage et au dépiégeage, grâce aux mesures (charges d'espace in-situ et ex-situ, mesures de courant) à disposition lors de cette étude. Certaines hypothèses peuvent être émises quant au changement de paramètres du modèle:

- les matériaux ne sont pas exactement les mêmes que ceux qui ont été utilisés pour optimiser les paramètres du Tableau 1. On peut cependant opposer ici que le LDPE est le matériau le plus simple, sans additifs, et que globalement les résultats de mesures reportées dans la littérature sur ces LDPE 'vierges' donnent les mêmes types de résultat.

- en irradiant le matériau, même peu de temps, on est arrivé à détériorer, ou tout du moins changer la structure du matériau, ce qui implique des paramètres de piégeage et de dépiégeage différents. C'est plutôt l'hypothèse que nous avons retenue, même si un gros travail reste à faire sur le sujet (cf. partie perspectives).



**Figure 37.** Densité de courant mesurée et modélisée en fonction du champ électrique appliqué pour des films LDPE irradiés et non-irradiés.

# PERSPECTIVES

Mes travaux de recherches futurs s'inscrivent dans la continuité des travaux que j'ai effectués jusqu'à présent: la compréhension du comportement des matériaux isolants solides sous contraintes électriques et leur modélisation, avec pour objectif ultime la modélisation du vieillissement de ces matériaux. Ces activités vont naturellement s'articuler autour de trois axes que sont la caractérisation des matériaux, le développement des modèles et leur validation, avec une partie significative sur la compréhension des interfaces, qui reste un point clé dans la génération et l'accumulation de charges dans les isolants solides.

## A. EVOLUTION DES MODELES

### A.1. MATERIAUX POLAIRES

De nombreux doutes subsistent dans la procédure qui a été mise en place pour insérer les mécanismes de polarisation d'orientation dans les modèles fluides. En effet, cette procédure semble fonctionner correctement pour du PEN, un matériau très polaire, mais ce n'est pas le cas pour le LDPE, qui lui est peu voire apolaire. Il sera nécessaire de vérifier notre procédure (i.e. mesure des relaxations diélectriques par spectroscopie diélectrique, fit de ces mesures dans le domaine fréquentiel, transformée de Fourier inverse pour obtenir l'information dans le domaine temporel) pour d'autres matériaux du génie électrique. Ceci peut être effectué relativement facilement sur des matériaux tels que du polyimide - PI, ou des résines époxy, qui sont des matériaux d'étude actuels dans notre équipe et au sein même du laboratoire dans d'autres équipes de recherche. Bien sûr, d'autres matériaux peuvent être envisagés, en fonction notamment des opportunités de collaboration.

Il est certain que le couplage entre fonctions de relaxation et modèle fluide nécessite aussi un développement en terme numérique. Je reviendrai sur cette question dans la partie B de ce chapitre.

D'autre part, la volonté affichée du développement de modèles fluides associant les mécanismes de polarisation était aussi de valider la lecture qui était faite de mesures telles que les courants thermo-stimulés, où relaxations polaires et dépiégeage de charges peuvent avoir lieu. Il n'est actuellement pas possible d'appliquer notre modèle global à ce type de mesure. En effet, les mesures TSDC sont basées sur la variation de la température en fonction du temps. Or, le modèle global utilise déjà un produit de convolution ( $D(x, t) = \varepsilon_0 \varepsilon(t) * E(x, t)$ ). Il faudrait ajouter un second produit de convolution sur la température à ce produit de convolution sur le champ électrique, ce qui mathématiquement n'est pas trivial. Des collaborations sont envisagées afin de voir s'il est possible, à terme, d'utiliser nos modèles pour comprendre les résultats de TSDC.

## **A.2. GENERATION ET TRANSPORT DES IONS**

Des ions sont présents dans de nombreux isolants solides polymères, et participent ainsi au transport et à l'accumulation de charges. C'est d'autant plus le cas que ces charges ne peuvent pas sortir du matériau, et ont tendance à s'accumuler aux électrodes, perturbant ainsi la distribution en champ électrique, et favorisant dans certains cas la polarisation due à la charge d'espace, voire même dans le cas de composites, la polarisation de type Maxwell-Wagner-Sillars. Il devient donc nécessaire d'en tenir compte dans les modèles fluides. Seulement, la tâche n'est pas si facile, car il est souvent difficile d'avoir accès à la quantité de ces ions dans le matériau, et à leurs origines. Les mesures actuelles ne différencient pas les charges électroniques des charges ioniques. C'est aussi le cas du PEN par exemple, où on a vu un comportement particulier, qui pourrait être assimilé au transport d'ions dans le volume (Figure 21b).

De nombreuses questions se posent quant à l'insertion des mécanismes liés aux ions dans les modèles:

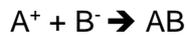
Comment les ions se dissocient-ils? Quels types d'ions ( $H^+$ ,  $OH^-$ , ou des ions plus gros)? On peut se douter, en se basant sur les lois de l'électrochimie, que la dissociation est fonction de la température, mais n'est-elle pas aussi fonction du champ électrique appliqué? de l'environnement électronique du matériau? Ceci est d'autant plus vrai que les mécanismes diffèrent pour chaque matériau.

Des études ont déjà été effectuées expérimentalement sur le sujet [37,106,CPI-37], notamment sur le LDPE, auquel on vient 'ajouter' des produits tels que de l'acétophénone ou du cumyl alcool, qui sont des sous-produits de réticulation du dicumylperoxyde, largement utilisé industriellement pour réticuler le LDPE. En comparant avec un LDPE témoin, on peut donc observer l'impact de ces sous-produits sur le comportement de la charge d'espace dans le matériau. D'autres voies sont envisagées, toujours en prenant comme matériau de travail le LDPE, puisque ce matériau est exempt d'ions. Même si celui-ci est hydrophobe, des expériences, datant des années 90 [107] ont montré qu'il était possible d'insérer des ions sous forme de sels dans le LDPE. Il est plus facile de trouver des informations concernant la dissociation de certains sels (vitesse de dissociation, de 'recombinaison' ..) que sur du cumyl alcool ou de l'acétophénone. Cette voie est donc aussi envisagée. Il s'agit donc dans un premier temps de développer des mesures originales dédiées, afin de mettre en lumière le mécanisme physique, et de le transcrire ensuite en équation.

Une autre voie envisagée est l'implantation par faisceau d'ions. Dans ce cas, l'ion en question est connu, et il pourrait être possible, après irradiation, de caractériser le comportement du matériau sous contrainte électrique voire thermo-électrique, comme ce qui a été fait dans la thèse de M. Banda. Cependant, il est possible que cette voie amène aussi à un dépôt d'énergie tel que la structure chimique du matériau soit endommagée, et qu'on vienne ainsi caractériser un matériau déjà vieilli.

Les précédents exemples se basent avant tout sur l'expérimentation afin de modéliser le comportement du matériau sous contrainte. Il est aussi possible de s'appuyer sur des résultats de modélisation afin d'envisager les mécanismes physiques en jeu. Le principal

point bloquant n'est pas tant le transport des ions, puisqu'une équation existe, et qu'elle semble unanimement acceptée, mais c'est plutôt la génération de ces ions qui pose problème. Afin de contourner ce problème, on peut dans un premier temps envisager qu'il existe au sein du matériau des espèces chimiques en équilibre. Cela veut dire qu'il existe deux réactions chimiques:



l'une de dissociation de l'espèce AB en deux ions  $A^+$  et  $B^-$ , et une de recombinaison des espèces ioniques en une espèce neutre AB. Si l'environnement immédiat de ces espèces chimiques vient perturber l'équilibre (i.e. température, concentration, application d'un champ électrique transportant les charges), alors l'équilibre est perturbé. Or, le système tend à s'opposer à cette perturbation, et pour revenir à un équilibre, une des équations va être privilégiée. Cette hypothèse simplifiée permettra de tester différents scénarios: une espèce mobile seulement, deux espèces mobiles avec des mobilités différentes, une concentration d'ions d'équilibre qui varie. Au lieu d'envisager une dissociation de deux espèces chimiques, il est possible de modéliser l'ionisation d'une molécule, avec une espèce immobile (ion 'lourd') et une particule électronique.

### **A.3. INTERFACES/MATERIAUX COMPOSITES**

Ces dernières années, un travail significatif sur les électrodes et les mécanismes associés à la génération de charges a été effectué. Ce travail doit être poursuivi, tant sur la partie expérimentale que sur la partie modélisation.

Jusqu'à présent, les hypothèses de modélisation proposées pour la génération de charges à une interface électrode (métal, semiconducteur)/isolant électrique pour différents protocoles expérimentaux, tels que l'application d'une tension AC, ou l'application d'un champ électrique très élevé, donnaient des résultats cohérents sur la base d'équations empiriques. Le fait de proposer un modèle basé sur la physique (en l'occurrence la chimie avec la gradation des propriétés de piégeage à l'interface) pourra peut être nous aider à la compréhension de l'interface.

La collaboration qui a vu le jour entre C. Villeneuve-Faure, A. Huzayyin et moi-même a permis notamment d'initier une approche à la fois expérimentale et de modélisation fluide et atomique. Cette collaboration montre que ce type d'approche fonctionne, et peut amener à des conclusions encourageantes sur le plan de la compréhension des mécanismes aux interfaces métal/isolant. Elle a notamment permis de comprendre le rôle non négligeable des charges de contact sur différents comportements particuliers observés expérimentalement (paquets de charges notamment). La prise en compte de ces charges, couplée à la gradation des propriétés dans la zone d'interface, pourra ensuite être proposée.

Un projet européen (SmartElec), porté par G. Teyssède, basé sur la même approche multiphysique - multi échelle, et dans lequel je suis responsable d'un Workpackage, permettrait notamment de continuer sur ce domaine, en alliant à la fois la modélisation multi

échelle (ab-initio, fluide, macroscopique) à l'expérimentation, elle aussi multi-échelle (depuis les mesures en champ proche dérivées de l'AFM jusqu'à des mesures macroscopiques).

L'interface n'existe pas seulement aux électrodes. Il peut s'agir aussi d'interfaces liées à des zones amorphes et cristallines. Dans ce cas, il est encore difficile d'avoir accès à des informations sur le piégeage des charges dans les zones amorphes ou cristallines, même si les simulations ab-initio se sont largement développées ces dernières années dans le domaine des matériaux isolants polymères. Le modèle, paramétré pour tenir compte d'hétérogénéités dans le matériau, pourrait être utilisé afin de vérifier s'il est possible d'observer ces hétérogénéités à l'échelle des mesures de charges d'espace par exemple. On peut aussi envisager de simuler, pour des matériaux de cristallinité différente, si les grandeurs macroscopiques telles que le courant, les potentiels de surface, changent et dans quelle mesure.

Les interfaces peuvent être aussi rencontrées dans les matériaux composites. Le développement des modèles fluides pour rendre compte de ces cas hétérogènes nécessite dans un premier temps le développement des modèles en plusieurs dimensions, afin notamment de prendre en compte de manière réelle ces inhomogénéités. Ceci sera abordé dans la partie B. de ce chapitre. Concernant l'implémentation de la physique, il sera aussi possible de se servir de ces modèles, moyennant des hypothèses assumées, pour mieux comprendre les mesures. On pourrait notamment répondre à la question: y a t'il réellement besoin d'une interphase pour expliquer le comportement d'un matériau nano-composite sous contrainte électrique ?

#### **A.4. MODELES MACROSCOPIQUES**

Des modèles d'ingénierie sont implémentés, principalement pour répondre à des problématiques industrielles où contrainte thermique et électrique sont couplées sur des structures plus ou moins complexes (câbles, jonctions de câbles, systèmes multicouches). Des recherches industrielles sont en cours, mettant en jeu le développement de ces modèles macroscopiques pour une application particulière. Ces modèles ont l'avantage d'être facile à développer, ne nécessitant que certaines informations sur la conductivité des matériaux. Les résultats de ces modèles donnent déjà de nombreuses informations sur la distribution en champ ou la charge à l'interface, données nécessaires notamment dans le design de nouveaux objets. Le but visé dans ces projets est d'une part la caractérisation de la conductivité de nouveaux matériaux, et de l'autre l'implémentation de cette conductivité dans un modèle macroscopique multicouche. Ceci permettra de vérifier notamment l'accumulation des charges à l'interface entre plusieurs matériaux, et la qualification des matériaux pour les tensions visées. Ces recherches doivent aboutir au développement d'un outil 'user-friendly' que l'industriel pourra utiliser pour concevoir de nouveaux objets.

Sur un plan plus amont, ces modèles donnent des résultats de distribution de champ électrique et d'accumulation de charges aux interfaces, résultats uniquement liés à la variation de la conductivité du/des matériaux. On peut cependant se poser la question de la validité de ces modèles lorsque le champ appliqué est suffisamment élevé pour injecter des

charges, ou que les matériaux ne sont pas exempts de charges intrinsèques, électroniques ou ioniques. Il est possible, dans certaines conditions, de comparer des simulations effectuées avec des modèles macroscopiques à des résultats issus de modèles microscopiques. Cette comparaison permettra i/ de déterminer si les deux modèles, qui traitent du transport de manière radicalement différente, arrivent à des résultats comparables et dans quelles conditions il peut y avoir comparaison, ii/ de proposer des conditions (température, champ électrique, matériau) pour lesquelles il est préférable d'utiliser les modèles macroscopiques (plus faciles à implémenter et plus rapides en terme de temps de calcul) par rapport à des modèles fluides.

## B. DEVELOPPEMENT NUMERIQUE DES MODELES FLUIDES

Lors du couplage entre mécanismes de polarisation et modèle fluide, nous avons vu les limites de nos modèles en terme de temps de calcul. Nos modèles sont performants en terme de précision de calcul/temps de calcul. Cependant, l'ajout d'un certain nombre d'hypothèses viennent et viendront dans le futur encore diminuer le pas de temps, et augmenter le temps de calcul. Il faut donc envisager d'autres types de modèles fluides, qui pourraient se révéler plus adaptés. Une possibilité est donc de développer des modèles fluides implicites, au lieu de modèles explicites. Les modèles implicites sont plus complexes à implémenter, mais donnent des résultats aussi précis que des modèles explicites, pour des temps de calcul beaucoup plus courts.

Les modèles fluides doivent être développés en 2/3D afin de répondre à la réalité des objets. Si l'on laisse de côté les problématiques physiques, il reste encore la problématique numérique lors du développement de ces modèles en plusieurs dimensions. Développer des codes 2D maison est cependant laborieux, et demande des connaissances poussées dans le domaine mathématiques/numérique. Nous avons donc choisi de nous tourner plutôt vers des logiciels commerciaux avec des résolutions par éléments finis afin de faire évoluer nos modèles vers le multi-dimension. Cette décision ne s'est pas faite d'un coup et de nombreux autres paramètres sont venus appuyer ce passage à un logiciel multi-physique. Nous avons par exemple développé dans l'équipe un modèle électrostatique d'aide à la compréhension des mesures dérivées de l'AFM [108]. L'optimisation de ce modèle a elle aussi été développée sur ce même logiciel [109]. De nombreux modules, notamment d'optimisation, sont ou seront bientôt disponibles. L'utilisation d'un tel logiciel a aussi l'avantage de proposer des modèles implicites. Nous avons pensé que cette conjonction était suffisamment favorable pour migrer vers les éléments finis. Cependant, il faut bien noter que le savoir-faire acquis grâce au développement de codes maison permet ainsi de connaître le potentiel et les limites du logiciel commercial pour des modèles temporels de transport de charges dans les isolants électriques solides. Il est simple de modéliser rapidement quelque chose grâce à ce logiciel. Il est moins simple d'affirmer que ce quelque chose simulé est juste... Dans tous les cas, le développement de nos modèles fluides grâce aux éléments finis, déjà amorcé lors de la thèse de M. Banda [T- 5], doit se poursuivre et aboutir sur la modélisation en plusieurs dimensions. Cela permettra effectivement de modéliser des objets hétérogènes, comme des matériaux semi-cristallins ou des composites. Cela nous permettra aussi de modéliser, en

temporel ou en stationnaire, des objets complexes (jonctions de câbles, matériaux multicouches rencontrés dans de nombreux systèmes du génie électrique). Enfin, cela permettra aussi de coupler/rapprocher les modèles macroscopiques, déjà développés grâce à ce logiciel, aux modèles fluides.

Un projet simple qui me tient à coeur est de vérifier, à l'aide des modèles fluides, si certaines observations expérimentales, telles que la répétition des paquets de charges (Figure 14) ne sont pas uniquement le fruit d'un artefact de traitement numérique. En effet, la mesure montre des fronts de charges, qui apparaissent de manière souvent hasardeuse au niveau d'une électrode, et se propagent ensuite dans tout le matériau. Les travaux précédents sur les charges de contact semblent montrer que ce phénomène est lié à la physique. Cependant, la mesure de charge d'espace PEA est une mesure 1D, dont le signal acoustique est intégré sur une surface non négligeable d'échantillon ( $< 1 \text{ cm}^2$ ). Il est possible que plusieurs fronts, se déclenchant à différents endroits (rugosité de surface) et différents temps sur la surface mesurée, donnent le même type de profil de charge une fois intégrés. Une fois les modèles fluides développés en 2D, il sera simple de vérifier, en intégrant la densité nette de charges, si le signal 1D résultant peut être comparé à un signal expérimental, et si les paquets de charges ne sont qu'un artefact de mesure. Cette recherche fait l'objet d'un projet Nafosted, qui doit être déposé avec Q. M. Hoang, ex-doctorant de l'équipe, et qui est maintenant en poste à Hanoi University of Industry. Grâce à cet exemple, on pourra aussi montrer que les modèles fluides peuvent être une aide à la compréhension de la mesure (=set-up) et non uniquement à la compréhension du comportement du matériau.

### **C. COMPREHENSION DES PROCESSUS DE VIEILLISSEMENT ET DEVELOPPEMENT DE MODELES DE VIEILLISSEMENT ASSOCIES AUX MODELES FLUIDES**

Au sein de notre équipe, deux voies ont été initiées, la première sur le vieillissement sous faisceau d'électrons, la seconde sous contrainte HVDC dans les câbles pour le transport de l'électricité terrestre. Il reste cependant un long travail expérimental afin de définir des marqueurs de vieillissement dans les isolants électriques solides, et ce, quel que soit leur environnement de travail.

Sans attendre les résultats du travail expérimental, la modélisation fluide peut aider à voir quelles hypothèses sont les plus probables dans le vieillissement des matériaux. Ceci peut notamment être fait sur la base du modèle à distribution exponentielle de pièges. Le changement de la structure chimique du matériau, dû à l'irradiation, peut être implémenté dans le modèle fluide de manières différentes:

- variation de la profondeur des pièges déjà présents
- modification du nombre de pièges et/ ou création de nouveaux pièges
- génération de nouveaux porteurs électroniques ou ioniques
- croissance/décroissance de la cristallinité si l'on tient compte de cette réalité dans le modèle, donc création de nouvelles interfaces
- ...

L'insertion de ces hypothèses peut être envisagée en utilisant des paramètres qui sont fonction soit du temps, soit d'un champ électrique seuil, à partir duquel un changement va avoir lieu. Une seconde méthode, plus difficile à mettre en oeuvre, mais plus réaliste, prendrait en compte le caractère aléatoire du vieillissement. Cette seconde approche nécessite cependant le développement de nouveaux codes, utilisant par exemple des méthodes de Monte Carlo (tirages aléatoires).



## REFERENCES

- [1] T. Takada, T. Maeno, and H. Kushibe, '*An Electric Stress-Pulse Technique for the Measurement of Charges in a Plate irradiated by an Electron Beam*', **IEEE Trans. Electr. Insul.**, Vol. 22, pp. 497-501, **1987**.
- [2] A. Velazquez-Salazar, L. Berquez and D. Marty-Dessus, '*Towards space charge measurements by (F)LIMM under DC Electric Field*', IEEE Int. Conf. on Dielectrics, Montpellier (France), 18-21 Jul 2016, **Proc. ICD-16**, pp. 223-226, **2016**.
- [3] S. Hole, '*Behind Space Charge Distribution Measurements*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 19, pp. 1208-1214, **2012**.
- [4] M. A. Lampert, and P. Mark, '*Current Injection in Solids*', New York and London: Academic Press, **1970**.
- [5] J. J. O'Dwyer, '*The Theory of Electrical Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics*', Oxford: Clarendon, **1973**.
- [6] L. A. Dissado, and J. C. Fothergill, '*Electrical Degradation and Breakdown in Dielectrics*', London: Peter Peregrinus Ltd., **1992**.
- [7] S. Diahm, M.L. Locatelli, '*Space-charge-limited currents in polyimide films*', **Appl. Phys. Lett.**, Vol. 101, 242905 (4p), **2012**.
- [8] H. J. Wintle, '*Charge Motion and Trapping in Insulators. Surface and bulk effects*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 6, pp. 1-10, **1999**.
- [9] A.B Walker, A. Kambili and S.J. Martin, '*Electrical transport modelling in organic electroluminescent devices*', **J. Phys.: Condens. Matter**, Vol. 14, pp. 9825-9876, **2002**.
- [10] S. Athanasopoulos, J. Kirkpatrick, D. Martínez, J.M. Frost, C.M. Foden, A.B. Walker and J. Nelson, '*Predictive Study of Charge Transport in Disordered Semiconducting Polymers*', **Nano Lett.**, Vol. 7, pp. 1785–1788, **2007**.
- [11] A. Wagenpfahl, D. Rauh, M. Binder, C. Deibel and V. Dyakonov, '*S-shape current voltage characteristics of organic solar devices*', **Phys. Rev. B**, Vol. 82, 115306 (9p), **2010**.
- [12] I. Adamovich, S.D. Baalrud, A. Bogaerts et al, '*The 2017 Plasma Roadmap: Low temperature plasma science and technology*', **J. Phys. D: Appl. Phys.**, Vol. 50, 323001 (46p), **2017**.
- [13] G.J.M. Hagelaar, '*Modelling electron transport in magnetized low-temperature discharge plasmas*', **Plasma Sources Sci. Technol.**, Vol. 16, S57-S66, **2007**.
- [14] M. Zakari, H. Caquineau, P. Hotmar and P. Segur, '*An axisymmetric unstructured finite volume method applied to the numerical modeling of an atmospheric pressure gas discharge*', **J. Comput. Phys.**, Vol. 281, pp. 473-492, **2015**.
- [15] F. Beunis, F. Strubbe, K. Neyts, and A. R. M. Verschueren, '*Power-law transient charge transport in a nonpolar liquid*', **Appl. Phys. Lett.**, Vol. 90, 182103 (4p), **2007**.

- [16] G. Blaise, '*Charge Localization and Transport in Disordered Dielectric Materials*', **J. Electrostat.**, Vol. 50, pp. 69-89, **2001**.
- [17] M. Meunier, and N. Quirke, '*Molecular Modeling of Electron Trapping in Polymer Insulators*', **J. Chem. Phys.**, Vol. 113, pp. 369-376, **2000**.
- [18] M. Meunier, N. Quirke, and A. Aslanides, '*Molecular Modelling of Electron Traps in Polymer Insulators: Chemical Defects and Impurities*', **J. Chem. Phys.**, Vol. 115, pp. 2876-2881, **2001**.
- [19] A. Moyassari, M. Unge, M.S. Hedenqvist, U.W. Gedde and F. Nilsson, '*First-principle simulations of electronic structure in semicrystalline polyethylene*', **J. Chem. Phys.**, Vol. 146, 204901 (11p), **2017**.
- [20] L. Chen, H.D. Tran and R. Ramprasad, '*Electronic Structure of Polyethylene: Role of Chemical, Morphological and Interfacial Complexity*', **Sci. Rep.**, Vol. 7, 6128(10pp), **2017**.
- [21] A. Huzayyin, 'Effect of Chemical Impurities on the Solid State Physics of Polyethylene', PhD Thesis, University of Toronto, **2011**.
- [22] Y Wang, D MacKernan, D Cubero, D Coker, N Quirke, '*Single electron states in polyethylene*', **J. Chem. Phys.**, Vol. 140, 154902 (11p), **2014**.
- [23] A. Huzayyin, S. Boggs, R. Ramprasad, '*An overview of impurity states and the basis for hole mobility in polyethylene*', **IEEE Electr. Insul. Mag.**, Vol. 28, pp. 23-29, **2012**.
- [24] R. Coelho, and B. Aladenize, 'Les Diélectriques: Propriétés Diélectriques des Matériaux Isolants', HERMES, **1993**.
- [25] R. H. Fowler, and L. Nordheim, 'Electron Emission in Intense Electrical Field', **Proceedings of the Royal Society**, Vol. 119, pp. 173, **1928**.
- [26] R. H. Good, and E. W. Müller, 'Handbuch der Physik', Vol. 21. Berlin: S. Flügge (Springer-Verlag), **1956**.
- [27] G. Papaioannou, F. Coccetti et R. Plana, '*On the modeling of dielectric charging in RF-MEMS capacitive switches*', IEEE Topical Meeting on Silicon Monolithic Integrated Circuits in RF Systems, New Orleans (USA), 11-13 Janvier 2010, **Proc. SiRF 2010**, pp. 108-111, **2010**.
- [28] R. Ramprasad, '*Phenomenological theory to model leakage currents in metal-insulator-metal capacitor systems*', **Phys. Status Solidi B**, Vol. 239, pp. 59-70, **2003**.
- [29] L. Chen, T.D. Huan, Y.C. Quintero, R. Ramprasad, '*Charge injection barriers at metal/polyethylene interfaces*', **J. Mater. Sci.**, Vol. 51, pp. 506-512, **2016**.
- [30] J. A. Anta, G. Marcelli, M. Meunier, and N. Quirke, '*Models of Electron Trapping and Transport in Polyethylene: Current-Voltage Characteristics*', **J. Appl. Phys.**, Vol. 92, pp. 1002-1008, **2002**.
- [31] T. Christen, '*HVDC Insulation Boundary Conditions for Modeling and Simulation*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 22, pp. 37-44, **2015**.

- [32] V.I. Arkhipov, U. Wolf and H. Bässler, '*Current injection from a metal to a disordered hopping system. II. Comparison between analytic theory and simulation*', **Phys. Rev. B**, Vol. 59, 7514-7520, **1999**.
- [33] S.Jung, C.H. Kim, Y. Bonnassieux and G. Horowitz, '*Injection barrier at metal/organic semiconductor junctions with a Gaussian density-of-states*', **J. Phys. D: Appl. Phys.**, Vol. 48, 395103 (10p), **2015**.
- [34] J.C. Scott and G.G. Malliaras, '*Charge injection and recombination at the metal-organic interface*', **Chem. Phys. Lett.**, Vol. 299, pp. 115-119, **1999**.
- [35] K.C. Kao, '*Dielectric Phenomena in Solids*', Elsevier, **2004**.
- [36] R. Gilbert, J.-P. Crine, B. Noirhomme, and S. Péliou, '*Measurement of Organic and Inorganic Ions in Cable Insulation and Shields*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Leesburg (USA), 29 Octobre - 2 Novembre 1989, **Proc. CEIDP 1989**, pp. 235-240, **1989**.
- [37] N. Hussin and G. Chen, '*Space charge accumulation and conductivity of crosslinking byproducts soaked in LDPE*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, West Lafayette (USA), 17-20 Octobre 2010, **Proc. CEIDP 2010**, pp. 125-128, **2010**.
- [38] F. Aida, S. Wang, M. Fujita, G. Tanimoto, and Y. Fujiwara, '*Study of the Mechanism of Space Charge Formation in Polyethylene*', **J. Electrostat.**, Vol. 42, pp. 3-15, **1997**.
- [39] T. Takeda, N. Hozumi, H. Suzuki, and T. Okamoto, '*Factors of Hetero Space Charge Generation in XLPE under DC Electric Field of 20 kV/mm*', **Electr. Eng. Jpn.**, Vol. 129, pp. 13-21, **1999**.
- [40] Y. F. F. Ho, G. Chen, A. E. Davies, R. N. Hampton, S. G. Swingler, and S. J. Sutton, '*Do Semiconductors Affect Space Charge?*', Int. Conf. on Solid Dielectrics, Eindhoven (Pays-Bas), 25-29 Juin 2001, **Proc. ICSD 2001**, pp. 105-108, **2001**.
- [41] A. Many, G. Rakavy, '*Theory of transient space-charge limited current in solids in the presence of trapping*', **Phys. Rev.**, Vol. 126, pp. 1980-1988, **1962**.
- [42] M. Iwamoto, '*The dielectric dispersion of insulating films with long-range movements of charge carriers*', **J. Appl. Phys.**, Vol. 77, 5314-5321, **1995**.
- [43] J. M. Alison, and R. M. Hill, '*A Model for Bipolar Charge Transport, Trapping and Recombination in Degassed Crosslinked Polyethylene*', **J. Phys. D: Appl. Phys.**, Vol. 27, pp. 1291-1299, **1994**.
- [44] M. Fukuma, M. Nagao, and M. Kosaki, '*Computer Analysis on Transient Space Charge Distribution in Polymer*', Int. Conf. on Properties and Applications of Dielectric Materials, Brisbane (Australie), 3-8 Juillet 1994, **Proc. ICPADM 1994**, pp. 24-27, **1994**.
- [45] K. Kaneko, T. Mizutani, and Y. Suzuoki, '*Computer Simulation on Formation of Space Charge Packets in XLPE Films*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 6, pp. 152-158, **1999**.

- [46] M. A. Brown, G. Chen, and P. A. Norman, 'High Voltage Performance of Bulk, and Amalgamated, PE insulation Systems: Part I. Space Charge Characteristics', **J. Phys. D : Appl. Phys.**, Vol. 36, pp. 3191-3196, **2003**.
- [47] J. Zhao, G. Chen and P.L. Lewin, 'Investigation into the formation of charge packets in polyethylene: experiment and simulation', **J. Appl. Phys.**, Vol. 112, 034116 (6p), **2012**.
- [48] T. Christen and E. Logakis, 'The generic conduction model for solid polymer HVDC insulation material', IEEE Int. Conf. on Solid Dielectrics (ICSD), Bologna (Italy), 30 Juin - 4 Juillet 2013, **Proc. ICSD 2013**, pp. 1044-47, **2013**
- [49] J. Xia, Y. Zhang, F. Zheng, Z. An and Q. Lei, 'Numerical analysis of packetlike charge behavior in low-density polyethylene by a Gunn Effectlike model', **J. Appl. Phys.**, Vol 109, 034101 (9p), **2011**.
- [50] A.T. Hoang, Y.V. Serdyuk and S. Gubanski, 'Charge transport in LDPE nanocomposites Part II - Computational approach', **Polymers**, Vol. 8, 103 (16p), **2016**.
- [51] D. Min, W. Wang and S. Li, 'Numerical analysis of space charge accumulation and conduction properties in LDPE nanodielectrics', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 22, 1483–1491, **2015**.
- [52] Z. Lv, Y.H. Cheng, K. Wu and L.A. Dissado, 'Dependence of charge accumulation on sample thickness in nano-SiO<sub>2</sub> doped LDPE', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 20, pp. 337-345, **2013**.
- [53] Y.V. Serdyuk and S. Gubanski, 'Computer Modeling of interaction of gas discharge plasma with solid dielectric barriers', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 12, pp. 725-735, **2005**.
- [54] A. Beldjilali, N. Saidi-Amroun and M Saidi, 'Space charge modeling in polymers: review of external applied constraints effects', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 23, pp. 573-585, **2016**.
- [55] N. F. Mott and E.A. Davis, 'Electric processes in Non-Crystalline Materials', 2nd Ed. Clarendon press, Oxford, U.K, **1979**.
- [56] C.K. Birdsall and A.B. Langdon, 'Plasma physics via computer simulation', Series in Plasma Physics, Institute of Physics pub., Bristol, U.S.A., **2005**.
- [57] R.W. Hockney and J.W. Eastwood, 'Computer simulation using particules', CRC Press, Taylor and Francis, Inc. Bristol, U.S.A., **1988**
- [58] M.H. Lean and W.P.L. Chu, 'Modeling effect of nanofillers on charge transport in composite polymer films for energy storage', **J. Energy Storage**, Vol. 4, 36–50, **2015**.
- [59] M.H. Lean and W.P.L. Chu, 'Simulation of bipolar charge transport in nanocomposite polymer films', **J. Appl. Phys.**, Vol. 117, 104102 (10p), **2015**.
- [60] H. Lau, 'Aufbau der Raumladung in einem betriebswarmen polymer Gleichspannungskabel', Archiv für Elektrotechnik, Vol. 53, pp. 265-275, **1970**.
- [61] M. Jeroense, 'Charges and discharges in HVDC paper-insulated cables', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 5, pp. 225-236, **1998**.

- [62] R. Bodega, 'Space charge accumulation in polymeric high Voltage HVDC cable systems', PhD Thesis, Delft University of Technology, **2006**.
- [63] J. Hjerrild, J. Holbøll, M. Henriksen and S. Boggs, '*Effect of semicon-dielectric interface on conductivity and electric field distribution*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 9, pp. 569-603, **2002**.
- [64] P. Alzate, '*A Survey of the Implementation of Numerical Schemes for Linear Advection Equation*', **Adv. in Pure Mathematics**, Vol. 4, 467-479, **2014**.
- [65] E. Vazquez-Cendon, A. Hidalgo, P. Garcia-Navarro and L. Cea, 'Numerical methods for hyperbolic equations: theory and applications', CRC Press, Taylor&Francis Group, London, U.K., **2013**.
- [66] Y. Wang and K. Hutter, '*Comparisons of numerical methods with respect to convectively dominated problems*', **Int. J. Numer. Meth. Fluids**, Vol. 37, pp 721-745, **2001**.
- [67] W. Hundsdorfer, J. Verwer, 'Numerical Solution of Time-Dependent Advection-Diffusion Reaction Equations', Springer Series in Computational Mathematics, Springer, Berlin, Heidelberg, New York, **2003**.
- [68] G. C. Montanari, M. Olivieri, and F. Palmieri, '*Electrical Characterisation and Comparison of Borealis Materials*', Rapport de Contrat BIAS : Borealis- LIMAT- LGET, Bologne, ITALIE, Sept. **2002**.
- [69] Contrat industriel BIAS, collaboration TechImp, Borealis, LIMAT, LGET, **2001-2004**.
- [70] J.C. Dyre, P. Maass, B. Roling and D.L. Sidebottom, '*Fundamental questions relating to ion conduction in disordered solids*', **Rep. Prog. Phys.**, Vol. 72, 046504 (15p), **2009**.
- [71] D. Min, C. Yan, Y. Huang, S. Li and Y. Ohki, '*Dielectric and carrier transport properties of silicone rubber degraded by gamma irradiation*', **Polymers**, Vol. 9, 533 (15p), **2017**.
- [72] T. Fuqiang, Z. Lin, Z. Junliang and P. Xiao, '*Space charge and dielectric behaviour of epoxy composite with SiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nano-micro fillers at varied temperatures*', *Compos. Part. B*, Vol. 114, pp. 93-100, **2017**.
- [73] R.W. Hare, 'Modelling space charge in solid dielectrics', Ph.D. Thesis, University of Bristol, **1993**.
- [74] M. Grobosch and M. Knupfer, '*Charge-injection barriers at realistic metal/organic interfaces: metals become faceless*', **Adv. Mater.**, Vol. 19, pp. 754-756, **2007**.
- [75] G. Chen, T.Y.G. Tay, A.E. Davies, Y. Tanaka and T. Takada, '*Electrodes and charge injection in low-density polyethylene*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 8, pp. 867-873, **2001**.
- [76] T. Mizutani, '*Behavior of charge carriers near metal/polymer inter-face*', Int. Symposium on Electrical Insulating Materials, Kita-Kyushu (Japan), 5-9 Juin 2005, **Proc. ISEIM 2005**, pp. 1-6, **2005**.
- [77] K. Kao, W. Hwang, 'Electrical Transport in Solids', New York: Pergamon Press, Vol.14, **1981**.

- [78] M. A. Baldo, S. R. Forrest, '*Interface-Limited injection in amorphous organic semiconductors*', **Phys. Rev. B**, Vol. 64, 085201 (17p), **2001**.
- [79] K. Yang, G.J. Zhang, M. Dong, Z. Yan, '*Electroluminescence and surface trap distribution in polymeric insulation*', Int. Conf. on Solid Dielectrics, Winchester (U.K.), 8-13 Juillet 2007, **Proc. ICSD 2007**, pp. 235-238, **2007**.
- [80] C. Thomas, G. Teyssedre and C. Laurent, '*Space charge dynamic in polyethylene: from dc to ac stress*', **J. Phys. D: Appl. Phys.**, Vol. 44, 015401 (8p), **2011**.
- [81] F. Zheng, Y. Zhang, C. Wu, L. Hu and Z. Xia, '*Space charge packet behaviour in Low density polyethylene*', Int. Conf. on Properties and Applications of Dielectric Materials, Nagoya (Japon), 1-5 Juin 2003, **Proc. ICPADM 2003**, pp. 681-684, **2003**.
- [82] G. Teyssedre, C. Laurent, G.C. Montanari, F. Palmieri, A. See, L.A. Dissado and J.C. Fothergill, '*Charge distribution and electroluminescence in cross-linked polyethylene under DC field*', **J. Phys. D: Appl. Phys.**, Vol. 34, pp. 2830-2844, **2001**.
- [83] N. Hozumi, H. Suzuki, T. Okamoto, K. Watanabe and A. Watanabe, '*Direct observation of time-dependent space charge profiles in XLPE cable under high electric fields*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 1, pp. 1068-1076, **1994**.
- [84] F. Zheng, Y. Zhang, B. Gong, J. Zhu, and C. Wu, '*Formation and migration of space charge packet in low density polyethylene*', **Sci. China, Ser. E: Eng. Mat. Sci.**, Vol. 48, pp. 354-360, **2005**.
- [85] K. Matsui, Y. Tanaka, T. Takada, T. Fukao, K. Fukunaga, T. Maeno and J.M. Alison, '*Space Charge Behavior in Low-density Polyethylene at Pre Breakdown*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 12, pp. 406-415, **2005**.
- [86] T.A. Ezquerra, F.J. Baltà-Calleja and H.G. Zachmann, '*Dielectric relaxation of amorphous random copolymers of poly(ethylene terephthalate) and poly(ethylene-2,6-naphthalene dicarboxylate)*', **Acta Polym.**, Vol. 44, pp. 18-24, **1993**.
- [87] H. Dörlitz and H.G. Zachmann, '*Molecular mobility in poly(ethylene-2,6-naphthalene dicarboxylate) as determined by means of deuterium NMR*', **J. Macromol. Sc., Physics**, Vol. 36, pp. 205-219, **1997**.
- [88] J. Belana, M. Mudarra, J. Calaf, J.C. Cañadas and E. Menendez, '*TSC study of the polar and free charge peaks of amorphous polymers*', **IEEE Trans. Electr. Insul.**, Vol. 28, pp. 287-293, **1993**.
- [89] J.J. Martinez-Vega, N. Zouzou, L. Boudou et J. Guastavino, '*Molecular mobility in amorphous and partially crystalline PEN after isothermal crystallization*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 8, pp. 776-784, **2001**.
- [90] J.C. Cañadas, J.A. Diego, M. Mudarra, J. Belana, R. Díaz-Calleja, M.J. Sanchis et C. Jaimés, '*Relaxational study of poly(ethylene-2,6-naphthalene dicarboxylate) by t.s.d.c., d.e.a. and d.m.a.*', **Polymer**, Vol. 40, pp. 1181-1190, **1999**.

- [91] O. Gallot-Lavallée, V. Griseri, G. Teyssedre et C. Laurent, '*The pulsed electro-acoustic technique in research on dielectrics for electrical engineering. Today's achievements and perspectives for the future*', **Revue internationale de génie électrique**, Vol. 8, pp. 749-772, **2005**.
- [92] J.C. Filippini, R. Tobazéon, C. Marteau, R. Coelho, J. Matallana et H. Janah, '*The alternate polarization current method for conduction analysis in polymers*', IEEE Int. Conf. on Solid Dielectrics, Toulouse (France), 5-9 Juillet 2004, **Proc. ICSD 2004**, pp. 115-118, **2004**.
- [93] S. Pelissou, H. St-Onge et M.R. Wertheimer, '*Electrical conduction of polyethylene below and above its melting point*', **IEEE Trans. Electr. Insul.**, Vol. 23, pp. 325-333, **1988**.
- [94] T. Mizutani, M. Ieda et I.B. Jordan, '*Anomalous Transient Currents in High-Density Polyethylene around 50–70°C*', **Jpn. J. Appl. Phys.**, Vol. 18, pp. 65-70, **1979**.
- [95] D.K.D. Gupta et K. Joyner, '*On the nature of absorption currents in polyethylene terephthalate (PET)*', **J. Phys. D: Appl. Phys.**, Vol. 9, pp. 829, **1976**.
- [96] N. Saidi-Amroun, S. Berdous, M. Saidi et M. Bendaoud, '*Modeling of Transient Currents in Polyethylene Terephthalate*', **Int. J. Polym. Anal. Character.**, Vol. 12, pp. 359-371, **2007**.
- [97] N. Saidi-Amroun, H. Oubouchou, S. Berdous, M. Saidi et M. Bendaoud, '*Temperature Effect on Transient Charge and Discharge Currents in Poly(Ethylene Naphthalene-2,6-dicarboxylate)*', **Int. J. Polym. Anal. Character.**, Vol. 11, pp. 159-169, **2006**.
- [98] E. Logakis, L. Petersonn and J. Viertel, '*Dielectric spectroscopy and thermally stimulated depolarization current investigations in low density polyethylene*', IEEE Int. Conf. on Solid Dielectrics (ICSD), Bologna (Italy), 30 Juin - 4 Juillet 2013, **Proc. ICSD 2013**, pp. 948-951, **2013**
- [99] N. Adi, T.T.N. Vu, G. Teyssedre, F. Baudoin and N. Sinisuka, '*DC model cable under polarity inversion and thermal gradient: build-up of design-related Space charge*', **Technologies**, 5, pp.1-16, **2017**.
- [100] V. Griseri, P. Malaval, L. Berquez, T.A. Tung, S. Le Roy, L. Boudou and A. Boulanger, '*Charge build-up and transport in electron beam irradiated polymers in a new irradiation chamber*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, West Lafayette (USA), 17-20 Oct. 2010. **Proc. CEIDP 2010**, pp 688–91, **2010**.
- [101] G.M. Sessler, M.T. Figueiredo and G.L. Ferreira, '*Models of charge transport in electron-beam irradiated insulators*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 11, pp. 192-202, **2004**.
- [102] D. Drouin, A. R. Couture, D. Joly, X. Tastet, V. Aimez, and R. Gauvin, '*CASINO V2.42—A Fast and Easy-to-use Modeling Tool for Scanning Electron Microscopy and Microanalysis Users*', **Scanning**, Vol. 29, pp. 92-101, **2007**.

- [103] <https://mcnp.lanl.gov>
- [104] <http://geant4.web.cern.ch/geant4/>
- [105] F. Salvat, X. Llovet, J.M. Fernández-Varea and J. Sempau, 'Monte Carlo Simulation in Electron Probe Microanalysis. Comparison of Different Simulation Algorithms', **Microchim. Acta**, Vol. 155, pp. 67-74, **2006**.
- [106] T. Kato, T. Mori, H. Miyake and Y. Tanaka, ' Investigation of the breakdown characteristic of LDPE including Cumylalcohol under DC High Electric Field', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Shenzhen (China), 20-23 Oct. 2013. **Proc. CEIDP 2013**, pp. 291-294, **2013**
- [107] T. Bao and J. Tanaka , '*The diffusion of ions in Polyethylene*', IEEE Int. Conf. on the Properties and Applications of Dielectric Materials, Tokyo (Japan), 8-12 Juillet 1991, **Proc. ICPADM 1991**, pp. 236-239, **1991**.
- [108] A. Boularas, F. Baudoin, G. Teyssedre, C. Villeneuve-Faure and S. Clain, '*3D modeling of electrostatic interaction between atomic force microscopy probe and dielectric surface: impact of tip shape and cantilever contribution*', **IEEE. Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 23, pp. 705-712, **2016**.
- [109] M. Azib, F. Baudoin, N. Binaud, C. Villeneuve-Faure, F. Bugarin, S. Segonds and G. Teyssedre, '*Numerical simulations for quantitative analysis of electrostatic interaction between atomic force microscopy probe and an embedded electrode within a thin dielectric: meshing optimization, sensitivity to potential distribution and impact of cantilever contribution*', accepted in **J. Phys. D: Appl. Phys.** , **2018**

## LISTE COMPLETE DES PUBLICATIONS

### A. PUBLICATIONS DANS DES REVUES INTERNATIONALES A COMITE DE LECTURE (27)

- P- 1 S. Le Roy, P. Segur, G. Teyssedre and C. Laurent, '*Description of bipolar charge transport in polyethylene using a fluid model with a constant mobility: model prediction*', **J. Phys. D: Appl. Phys.**, Vol. 37, pp. 298-305, **2004**.
  
- P- 2 S. Le Roy, H. Miyake, Y. Tanaka, T. Takada, G. Teyssedre and C. Laurent, '*Simultaneous measurement of electroluminescence and space charge distribution in low density polyethylene under a uniform dc field*', **J. Phys. D: Appl. Phys.**, Vol. 38, pp. 89-94, **2005**.
  
- P- 3 S. Le Roy, G. Teyssedre, C. Laurent, '*Charge Transport and Dissipative Processes in Insulating Polymers: Experiments and Model*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 12, pp. 644-654, **2005**.
  
- P- 4 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, pp. 1427-1436, **2006**.
  
- P- 5 S. Le Roy, G. Teyssedre and C. Laurent, '*Numerical methods in the simulation of charge transport in solid dielectrics*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 13, pp. 239-246, **2006**.
  
- P- 6 F. Boufayed, G. Teyssedre, C. Laurent, S. Le Roy, L.A. Dissado, P. Segur and G.C. Montanari, '*Models of bipolar charge transport in Polyethylene*', **J. Appl. Phys.**, Vol. 100, 104105 (10p), **2006**.
  
- P- 7 F. Baudoin, S. Le Roy, G. Teyssedre and C. Laurent, '*Bipolar charge transport model with trapping and recombination : an analysis of the current vs. applied electric field characteristic in steady state conditions*', **J. Phys. D: Appl. Phys.**, Vol. 41, 025306 (10p), **2008**.
  
- P- 8 S. Le Roy, F. Baudoin, V. Griseri, C. Laurent and G. Teyssedre, '*Charge transport modelling in electron-beam irradiated dielectrics: model for polyethylene*', **J. Phys. D: Appl. Phys.**, Vol. 43, 315402 (10p), **2010**.

- P- 9 F. Baudoin, D.H. Mills, P.L. Lewin, S. Le Roy, G. Teyssedre and C. Laurent, '*Modeling electroluminescence in insulating polymers under AC stress: effect of excitation waveform*', **J. Phys. D: Appl. Phys.**, Vol. 44, 165402 (11p), **2011**.
  
- P- 10 B. Vissouvanadin, S. Le Roy, G. Teyssedre, C. Laurent, I. Denizet, M. Mammeri and B. Poisson, '*Impact of concentration gradient of polarizable species on the electric field distribution in polymeric insulating material for HVDC cable*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 18, pp. 833-839, **2011**.
  
- P- 11 S. Le Roy, F. Baudoin, V. Griseri, C. Laurent and G. Teyssedre, '*Space charge modeling in Electron-Beam Irradiated PolyEthylene: Fitting Model and Experiments*', **J. Appl. Phys.**, Vol. 112, 023704 (8p), **2012**.
  
- P- 12 F. Baudoin, D.H. Mills, P.L. Lewin, S. Le Roy, G. Teyssedre, C. Laurent and S. Clain, '*Modelling electroluminescence in insulating polymers under ac stress: effect of voltage and pre-stressing*', **J. Phys. D: Appl. Phys.**, Vol. 45, 325303 (11p), **2012**.
  
- P- 13 M. Taleb, G. Teyssedre, S. Le Roy and C. Laurent, '*Modelling of Charge Injection and Extraction in a Metal/Polymer Interface through an Exponential Distribution of Surface States*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 20, pp. 311-320, **2013**.
  
- P- 14 C. Laurent, G. Teyssedre, S. Le Roy and F. Baudoin, '*Charge dynamics and its energetic features in polymeric materials*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 20, pp. 357-381, **2013**.
  
- P- 15 F. Baudoin, C. Laurent, G. Teyssedre and S. Le Roy, '*Charge packets modeling in polyethylene*', **Appl. Phys. Lett.**, Vol. 104, 152901 (4p), **2014**.
  
- P- 16 B. Vissouvanadin, T. T. N. Vu, L. Berquez, S. Le Roy, G. Teyssèdre and C. Laurent, '*Deconvolution Techniques for Space Charge Recovery Using Pulsed Electroacoustic Method in Coaxial Geometry*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 21, pp. 821-828, **2014**.
  
- P- 17 M-Q Hoang, L Boudou, S Le Roy and G Teyssedre, '*Dissociating space charge processes from orientation polarization in Poly(ethylene naphthalate) films*', **J. Phys. D: Appl. Phys.**, Vol. 47, 455306 (8p), **2014**.
  
- P- 18 T.T.N. Vu, G. Teyssedre, B. Vissouvanadin, S. Le Roy and C. Laurent, M. Mammeri and I. Denizet, '*Field distribution in polymeric MV-HVDC model cable under temperature*

*gradient: simulation and space charge measurements*, **European Journal of Electrical Engineering**, Vol. 17, pp. 307-325, **2014**

- P- 19 B. Vissouvanadin, G. Teyssedre, S. Le Roy, C. Laurent, G. Ranoux and X. Coqueret, '*Dielectric and Electrical Properties of Radiation-Cured Epoxy*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 22, pp. 1142-1150, **2015**.

- P- 20 T.T.N. Vu, G. Teyssedre, B. Vissouvanadin, S. Le Roy and C. Laurent, '*Correlating Conductivity and Space Charge Measurements in Multi-dielectrics under Various Electrical and Thermal Stresses*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 22, pp. 117-127, **2015**

- P- 21 S. Le Roy, G. Teyssedre and C. Laurent, '*Modelling space charge in a cable geometry*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 23, pp. 2361–2367, **2016**

- P- 22 M.Q. Hoang, S. Le Roy, L. Boudou, G. Teyssedre, '*Implementation of Polarization Processes in a Charge Transport Model applied on Poly(ethylene naphthalate) Films*', **J. Appl. Phys.**, Vol. 119, 224105 (8p), **2016**

- P- 23 T.T.N. Vu, G. Teyssedre, S. Le Roy, C. Laurent, '*Space Charge Criteria for the Assessment of Insulation Materials for HVDC*', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 24, pp.1405-1415, **2017**

- P- 24 A.C. Kusumasembada, G. Teyssedre, S. Le Roy, L. Boudou and N.I. Sinisuka, '*Assessment of a charge transport model for LDPE through conduction current measurement*', **Advances in Technology Innovation**, Vol. 2, pp. 01-07, **2017**

- P- 25 T.T.N. Vu, G. Teyssedre, S. Le Roy and C. Laurent, '*Maxwell-Wagner effect in multi-layered dielectrics: interfacial charge measurement and modelling*', **Technologies**, Vol. 5, pp.1-14, **2017**

- P- 26 M.Q. Hoang, L. Boudou, G. Teyssedre and S. Le Roy, '*Modelling polarization and conduction processes in poly(Ethylene Naphthalate)*', **Mater. Res. Express**, Vol. 4, 085304(8p), **2017**

- P- 27 M.E. Banda, V. Griseri, G. Teyssedre and S. Le Roy, '*Polarization of electron-beam irradiated LDPE films: contribution to charge generation and transport*', **J. Phys. D: Appl. Phys.**, Vol. 51, 155303(10pp), **2018**

## B. CONFERENCES INVITEES (11)

- I- 1 C. Laurent, G. Teyssedre and S. Le Roy, '*A discussion on charge transport and electroluminescence in insulating polymers*', Int. Symposium on Electrical Insulating Materials, 5-9 Juin 2005, Kita-Kyushu (Japan), **Proc. ISEIM 2005**, Vol. 1, pp. 7-15, **2005**
  
- I- 2 G. Teyssedre, C. Laurent, S. Le Roy and F. Baudoin, '*Charge transport modelling: a key towards a smart engineering of insulating polymeric materials*', Int. Conf. on Polymeric Materials in Power Engineering, 4-6 Octobre 2007, Bangalore (India), **Proc. ICPMPE 2007**, pp 1-9, **2007**
  
- I- 3 C. Laurent, G. Teyssedre, S. Le Roy and F. Baudoin, '*Knowledge-based modelling of charge transport in insulating polymers: from experiments to model optimization*', IEEE Int. Conf. On Properties and Applications of Dielectric Materials, Harbin (China), 19-23 July 2009, **Proc. ICPAM 2009**, pp. 1-8, **2009**
  
- I- 4 C. Laurent, S. Le Roy, F. Baudoin and G. Teyssède, '*Space Charge and Charge Transport. Part 1. The classical approach and its simulation*', Invited Conference at the **International Academic Conference** of the "State Key Laboratory of Electrical Insulation and Power Equipment", Xi'an (China), 23-27 September **2010**
  
- I- 5 S. Le Roy, '*Approches duale simulation-expérimentation pour la compréhension des phénomènes de charge d'espace : où sont les difficultés?*', **1ère Rencontre Francophone sur les Matériaux Isolants (RFMI-2010)**, Tetouan (Maroc), 28 Sept. - 2 Oct. **2010**
  
- I- 6 S. Le Roy, F. Baudoin, V. Griseri, C. Laurent and G. Teyssedre, '*Inferring the electronic surface properties of PE on the basis of an exponential distribution of trapping centres*', Invited conference at the 3<sup>rd</sup> **Workshop on Electrical Ageing**, Autrans (France), 05-08 July **2011**
  
- I- 7 C. Laurent, F. Baudoin, V. Griseri, S. Le Roy and G. Teyssedre, '*A discussion on the electronic properties of polyethylene interfaces*', Int. Symposium on Electrical Insulating Materials, Kyoto (Japan), 6-10 Septembre 2011, **Proc. ISEIM 2011**, pp. 139-143, **2011**
  
- I- 8 S. Le Roy, '*Modelling space charge behaviour in solid organic dielectrics under electric stress: What are the difficulties?*', Invited conference at the First **Workshop on Numerical Methods Applied to Dielectrics**, IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Montréal (Canada), 14-17 Octobre 2012, **2012**

- I- 9 S. Le Roy, T.T.N. Vu, C. Laurent C. and G. Teyssedre, '*Modelling charge generation and transport in solid organic dielectrics under DC stress*', **Jicable**, European Seminar on materials for HVDC cables and accessories, Perpignan (France), 18 - 20 Nov. 2013, **Proc. Jicable 2013**, pp.1-6, **2013**
- I- 10 S. Le Roy, F. Baudoin, T.T.N. Vu, G. Teyssedre, C. Laurent, '*Modelling charge transport and storage in polymeric insulating materials*', **Workshop of APIANS** - Analysis for Polymeric Insulating materials using Advanced Numerical Simulation-, within 7th International Symposium on Electrical Insulating Materials (**ISEIM 2014**), Toki Messe, Niigata City, Japan, 01-05 June 2014, **2014**
- I- 11 G. Teyssedre, V. Griseri, M. Banda, S. Le Roy, C. Laurent, '*e-beam as prototype source for investigating electrical ageing of insulating polymers*', 12<sup>th</sup> meeting of the "Ionizing radiation and polymers" symposium (**IRap2016**), Giens, France, Sept. 25-30, **2016**

### C. CONFERENCES INTERNATIONALES AVEC PUBLICATIONS (45)

- CPI- 1 S. Le Roy, G. Teyssedre, C. Laurent, P. Segur, '*Numerical modeling of space charge and electroluminescence in polyethylene under DC field*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Cancun (Mexique), 20-24 Octobre 2002, **Proc. CEIDP 2002**, pp. 172-175, **2002**
  
- CPI- 2 S. Le Roy, G. Teyssedre, C. Laurent, P. Segur, '*Numerical Model for Studying Dynamic Space Charge Behavior in Polyethylene*', Int. Conf. on Properties and Applications of Dielectric Materials, Nagoya (Japon), 1-5 Juin 2003, **Proc. ICPADM 2003**, pp. 859-862, **2003**
  
- CPI- 3 H. Miyake, S. Le Roy, Y. Tanaka, T. Takada, G. Teyssedre, and C. Laurent, '*Simultaneous Measurement of Electroluminescence and Space Charge Distribution in Cross-linked Polyethylene under DC Field*', IEEE Int. Conf. on Solid Dielectrics, Toulouse (France), 5-9 Juillet 2004, **Proc. ICSD 2004**, pp. 186-189, **2004**
  
- CPI- 4 F. Boufayed, S. Le Roy, G. Teyssède, C. Laurent, P. Segur, E. Cooper, L.A. Dissado and G.C. Montanari, '*Numerical resolution of charge transport in cross-linked polyethylene by means of a bipolar model with a distribution of traps*', IEEE Int. Conf. on Solid Dielectrics, Toulouse (France), 5-9 Juillet 2004, **Proc. ICSD 2004**, pp. 562-566, **2004**
  
- CPI- 5 S. Le Roy, G. Teyssedre, P. Segur and C. Laurent, '*Modeling of Space Charge, Electroluminescence and Current in Low Density Polyethylene under DC and AC Field*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Boulder (USA), 17-20 Octobre 2004, **Proc. CEIDP 2004**, pp. 29-32, **2004**
  
- CPI- 6 F. Boufayed, S. Le Roy, G. Teyssedre, C. Laurent, P. Segur, L.A. Dissado and G.C. Montanari, '*Simulation of bipolar charge transport in polyethylene featuring trapping and hopping conduction through an exponential distribution of traps*', IEEE Int. Symposium on Electrical Insulating Materials, Kita-Kyushu (Japan), 5-9 Juin 2005, **Proc. ISEIM 2005**, pp. 227-230, **2005**
  
- CPI- 7 S. Le Roy, F. Boufayed, G. Teyssedre, C. Laurent, P. Segur, R. Bodega, P.H.F. Morshuis, G.C. Montanari and L.A. Dissado, '*Computer simulation of space charge distribution in an XLPE-EPR sandwich*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Nashville (USA), 16-19 Octobre 2005, **Proc. CEIDP 2005**, pp. 661-664, **2005**
  
- CPI- 8 S. Le Roy, F. Baudoin, G. Teyssède, C. Laurent, L.A. Dissado and G.C. Montanari, '*Tools for understanding the thermo-electrical behaviour of XLPE insulation in*

*power cables and accessories*', Int. Conf. on Insulated Power Cables, Versailles (France), 24-28 June 2007, **Proc. Jicable 2007**, pp. 714-718, **2007**

- CPI- 9 S. Le Roy, F. Boufayed, F. Baudoin, G. Teyssède and C. Laurent, '*A user-friendly tool for simulating the time-dependent field distribution in PE insulation on the basis of a physical approach*', Int. Conf. on Insulated Power Cables, Versailles (France), 24-28 June 2007, **Proc. Jicable 2007**, pp. 524-529, **2007**

- CPI- 10 F. Baudoin, S. Le Roy, G. Teyssède and C. Laurent, '*Bipolar charge transport model with trapping and recombination: an analyze of the current vs. applied field characteristic*', IEEE Int. Conf. on Solid Dielectrics, Winchester (U.K.), 8-13 Juillet 2007, **Proc. ICSD 2007**, pp. 19-22, **2007**

- CPI- 11 S. Le Roy, G. Teyssède, C. Laurent, L.A. Dissado and G.C. Montanari, '*Relative importance of trapping and extraction in the simulation of space charge distribution in polymeric insulators under DC potentials*', IEEE Int. Conf. on Solid Dielectrics, Winchester (U.K.), 8-13 Juillet 2007, **Proc. ICSD 2007**, pp. 494-497, **2007**

- CPI- 12 L.A. Dissado and S. Le Roy, '*The effect of contact charge upon the injection current and electrode-insulator interface*', IEEE Int. Conf. on Solid Dielectrics, Winchester (U.K.), 8-13 Juillet 2007, **Proc. ICSD 2007**, pp. 31-34, **2007**

- CPI- 13 S. Le Roy, V. Griseri, G. Teyssède and C. Laurent, '*Simulation of Charge Build Up and Transport in Electron Beam Irradiated Organic Dielectrics: Comparison to Space Charge Measurements*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Montréal (Canada), 16-19 Octobre 2008, **Proc. CEIDP 2008**, pp. 661-664, **2008**

- CPI- 14 N. El Kissi, F. Alloin, A. Dufresne, J.Y. Sanchez, F. Brossard, A. D'Aprèa and S. Le Roy, '*Influence of Cellulose Nanofillers on the Rheological Properties of Polymer Electrolytes*', **AIP Conf. Proc.**, Vol. 1027, pp. 87-89, **2008**

- CPI- 15 B. Vissouvanadin, S. Le Roy, G. Teyssède, C. Laurent, I. Denizet, M. Mammeri and B. Poisson, '*Impact of conditioning on space charge formation in XLPE under dc electrical stress*', IEEE Int. Conf. on the Properties and Applications of Dielectric Materials, Harbin (China), 19-23 July 2009, **Proc. ICPADM 2009**, pp. 961-964, **2009**

- CPI- 16 S. Le Roy, F. Baudoin, L. Boudou, C. Laurent and G. Teyssède, '*Numerical simulation of thermo-stimulated depolarization currents in polyethylene films*', IEEE Int. Conf.

on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Virginia Beach (Virginia, USA), 18-21 Octobre 2009, **Proc. CEIDP 2009**, pp. 154-157, **2009**

- CPI- 17 M. Taleb, G. Teyssedre and S. Le Roy, '*Role of the interface on charge build-up in a low-density polyethylene: Surface roughness and nature of the electrode*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Virginia Beach (Virginia, USA), 18-21 Octobre 2009, **Proc. CEIDP 2009**, pp. 112-115, **2009**

- CPI- 18 B. Vissouvanadin, S. Le Roy, G. Teyssedre, C. Laurent, I. Denizet, M. Mammeri and B. Poisson, '*Effect of cross-linking agent on space charge accumulation in XLPE under DC electric stress*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Virginia Beach (Virginia, USA), 18-21 Octobre 2009, **Proc. CEIDP 2009**, pp. 727-730, **2009**

- CPI- 19 F. Baudoin, S. Le Roy, G. Teyssedre and C. Laurent, '*Input of optimization techniques for implementing charge transport models in electrical insulation*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Virginia Beach (Virginia, USA), 18-21 Octobre 2009, **Proc. CEIDP 2009**, pp. 124-127, **2009**

- CPI- 20 S. Le Roy, F. Baudoin, L. Boudou, C. Laurent and G. Teyssède, '*Thermo-Stimulated Depolarization Currents in Polyethylene Films. Numerical Simulations and Experiments*', Int. Conf. on Solid Dielectrics, Potsdam (Germany), 4-9 Juillet 2010, **Proc. ICSD 2010**, pp. 703-706, **2010**

- CPI- 21 I. Pashinin, S. Panchesnyi, S. Le Roy and L.C. Pitchford, '*Simulation of Breakdown in Gas Volumes Inside Dielectrics*', Gaseous Electronics Conference, Paris (France), 4-8 Octobre 2010, **Proc. GEC 2010**

- CPI- 22 M. Taleb, G. Teyssède, S. Le Roy and C. Laurent, '*Charge Injection and Extraction in Metal/Polyethylene Contact through an Exponential Distribution of Surface States*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, West Lafayette (USA), 17-20 Octobre 2010, **Proc. CEIDP 2010**, pp. 1-4, **2010**

- CPI- 23 B. Vissouvanadin, C. Laurent, S. Le Roy, G. Teyssède, I. Denizet, M. Mammeri and B. Poisson, '*A Deconvolution Technique for Space Charge Recovery in Lossy and Dispersive Dielectrics using PEA Method*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, West Lafayette (USA), 17-20 Octobre 2010, **Proc. CEIDP 2010**, pp. 1-4, **2010**

- CPI- 24 I. Pashinin, S. Pancheshnyi, S. Le Roy and L.C. Pitchford, '*Simulation of Breakdown in Small Confined Volumes inside Dielectrics for Electrical Ageing and Diagnostics*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, West Lafayette (USA), 17-20 Octobre 2010, **Proc. CEIDP 2010**, pp. 1-4, **2010**
  
- CPI- 25 F. Baudoin, D. H. Mills, P. L. Lewin, S. Le Roy, G. Teyssède and C. Laurent, '*Contribution to the Modelling of Electroluminescence in High Voltage Polymeric Materials*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, West Lafayette (USA), 17-20 Octobre 2010, **Proc. CEIDP 2010**, pp. 1-4, **2010**
  
- CPI- 26 V. Griseri, P. Malaval, L. Berquez, T. A. Tung, S. Le Roy, L Boudou, A. Boulanger, '*Charge Build-Up and Transport in Electron Beam Irradiated Polymers in a New Irradiation Chamber*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, West Lafayette (USA), 17-20 Octobre 2010, **Proc. CEIDP 2010**, pp. 1-4, **2010**
  
- CPI- 27 B. Vissouvanadin, G. Teyssède, S. Le Roy, C. Laurent, I. Denizet, M. Mammeri and B. Poisson, '*A methodology for the assessment of HVDC-XLPE Cable Insulation*', Int. Conf. on Insulated Power Cables, Versailles (France), 19-23 juin 2011, **Proc. Jicable 2011**, Vol.2, pp 50-55, **2011**
  
- CPI- 28 F. Baudoin, D.H. Mills, P.L. Lewin, S. Le Roy, G. Teyssède and C. Laurent, '*Modelling Electroluminescence in Insulating Polymers Under Sinusoidal Stress: Effect of Applied Voltage, Frequency and Offset*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Cancun (Mexique), Octobre 2011, **Proc. CEIDP 2011**, pp. 820-823, **2011**
  
- CPI- 29 B. Vissouvanadin, G. Ranoux, X. Coqueret, S. Le Roy, C. Laurent, G. Teyssède, '*Correlating structural and electrical properties in radiation-cured polymers*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Montréal (Canada), 14-17 Octobre 2012, **Proc. CEIDP 2012**, pp 661 - 664, **2012**
  
- CPI- 30 F. Baudoin, C. Laurent, S. Le Roy, G. Teyssède, '*Charge packets modeling in insulating polymers based on transport description*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Montréal (Canada), 14-17 Octobre 2012, **Proc. CEIDP 2012**, pp 665 - 668, **2012**
  
- CPI- 31 B. Vissouvanadin, S. Le Roy, G. Teyssède, C. Laurent, G. Ranoux and X. Coqueret, '*Effect of initiator nature on ionic conduction in radiation cured epoxies*', IEEE Int. Conf. on Solid Dielectrics (ICSD), Bologna (Italy), **Proc. ICSD 2013**, pp. 27-30, **2013**

- CPI- 32 T.T.N. Vu, G. Teyssedre, B. Vissouvanadin, S. Le Roy, C. Laurent, M. Mammeri and I. Denizet, '*Electric field profile measurement and modeling in multi-dielectrics for HVDC application*', IEEE Int. Conf. on Solid Dielectrics (ICSD), Bologna (Italy), **Proc. ICSD 2013**, pp. 413-416, **2013**
  
- CPI- 33 M.Q. Hoang, L. Boudou, S. Le Roy and G. Teyssedre, '*Electrical characterization of PEN films using TSDC and PEA measurements*', IEEE Int. Conf. on Solid Dielectrics (ICSD), Bologna (Italy), **Proc. ICSD 2013**, pp. 488-91, **2013**
  
- CPI- 34 F. Baudoin, C. Laurent, S. Le Roy, G. Teyssedre, '*Influence of the transport mechanism on simulated charge packet propagation in polyethylene*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Shenzhen (China), 20-23 Oct. 2013. **Proc. CEIDP 2013**, pp. 270-273, **2013**
  
- CPI- 35 K. Makasheva, C. Villeneuve-Faure, S. Le Roy, B. Despax, L. Boudou, C. Laurent, G. Teyssedre, '*Silver nanoparticles embedded in dielectric matrix: charge transport analysis with application to control of space charge formation*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Shenzhen (China), 20-23 Oct. 2013. **Proc. CEIDP 2013**, pp. 238-241, **2013**
  
- CPI- 36 T.T.N. Vu, G. Teyssedre, B. Vissouvanadin, S. Le Roy, C. Laurent, M. Mammeri and I. Denizet, '*Investigating the effect of temperature gradient on field distribution in polymeric MV-HVDC model cable through simulation and space charge measurement*', **Jicable 2013**, European Seminar on materials for HVDC cables and accessories, Perpignan, France, pp. 1-6, **2013**
  
- CPI- 37 S. Le Roy and G. Teyssedre, '*Ion generation and transport in low density polyethylene under electric stress*', IEEE Int. Conf. on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Ann Arbor (USA), 18-21 Oct. 2015. **Proc. CEIDP 2015**, pp. 63-66, **2015**
  
- CPI- 38 S. Le Roy, C. Villeneuve-Faure, J. H. Chang and A. Huzayyin, '*Coupling Atomic Scale Modeling, Fluid Modeling and KPFM Measurements to Characterize an Interface at Nanoscale*', IEEE Int. Conf. on Dielectrics, Montpellier, France, 18-21 Jul 2016. **Proc. ICD 2016**, pp.897-900, **2016**
  
- CPI- 39 M. E. Banda, V. Griseri, S. Le Roy and G. Teyssèdre, '*Polarization of electron-beam irradiated LDPE films to understand space charge generation and transport*', IEEE Int. Conf. on Dielectrics, Montpellier, France, 18-21 Jul 2016. **Proc. ICD 2016**, pp., **2016**

- CPI- 40 F. Gullo, C. Villeneuve-Faure, S. Le Roy, C. Laurent, G. Teyssedre, T.Christen, C.Törnkvist, H. Hillborg, '*Nano-scale characterization of insulator-semicon contacts*', IEEE Int. Conf. on Dielectrics, Montpellier, France, 18-21 Jul 2016. **Proc. ICD-16**, pp. 792-795, **2016**
  
- CPI- 41 F. Baudoin, S. Le Roy, G. Teyssedre, C. Laurent, I. Alhossen, F. Bugarin, S. Segonds, N. Binaud, '*Parameters sensitivity analysis in charge transport model using Sobol indexes for optimization purpose*', IEEE Int. Conf. on Dielectrics, Montpellier, France, 18-21 Jul 2016. **Proc. ICD-16**, pp. 832-835, **2016**
  
- CPI- 42 F. Gullo, C. Villeneuve-Faure, S Le Roy, C. Laurent, G. Teyssedre, T. Christen and H. Hillborg, '*Impact of press-molding process on chemical, structural, and dielectric properties of insulating polymers*', 8th Int. Symp. Electr. Insul. Materials, Toyohashi City (Japan), 12-15 Sept. 2017, **Proc. ISEIM 2017**, pp. 1-4, **2017**
  
- CPI- 43 F. Gullo, T. Christen, C. Villeneuve-Faure, H. Hillborg, C. Laurent, S. Le Roy, G. Teyssedre, '*Field and charge distribution at semicon/polyethylene interfaces from combinations of probe force microscopy measurements*', 16th International Symposium on Electrets, Sept. 4-8, 2017, Leuven (Belgium), **Proc. ISE 2017**, pp. 1-2, **2017**
  
- CPI- 44 M.Q. Hoang, S. Le Roy, G. Teyssedre and L. Boudou, ' Inserting Polarization Processes in a fluid charge transport model: Improvements and difficulties', IEEE Int. Conf. on the Properties and Applications of Dielectric Materials, Xian (China), 20-24 May 2018, **Proc. ICPADM 2018**, **2018**
  
- CPI- 45 C. Villeneuve-Faure, G. Teyssedre, L. Boudou, S. Le Roy, and K. Makasheva, '*Interface Properties in Dielectrics: a Cross-section Analysis by Atomic Force Microscopy*', IEEE Int. Conf. on the Properties and Applications of Dielectric Materials, Xian (China), 20-24 May 2018, **Proc. ICPADM 2018**, **2018**

#### D. CONFERENCES INTERNATIONALES ET NATIONALES SANS PUBLICATIONS (15)

- CS- 1 S. Le Roy, G. Teyssedre, P. Segur and C. Laurent , *'Numerical Modelling of Space Charge, Electroluminescence and Current in Low Density Polyethylene under DC Fields'*, IOP Conference on Modelling, Simulation and Design of Dielectrics, Cambridge (UK), 6-8 Avril **2005**
- CS- 2 F. Boufayed, S. Le Roy, G. Teyssedre, C. Laurent, P. Segur, L.A. Dissado and G.C. Montanari, *'Models of bipolar charge transport in Polyethylene'*, IOP Conference on Modelling, Simulation and Design of Dielectrics, Cambridge (UK), 6-8 Avril **2005**
- CS- 3 F Baudoin, S Le Roy, G Teyssedre and C Laurent, *'A Steady State Solution for a Bipolar Charge Transport Model in Polyethylene'*, Conference on Space Charge (CSC), Tours (France), 3-7 juillet **2006**
- CS- 4 S. Le Roy, G. Teyssedre, C. Laurent and L.A. Dissado ,*'Simulation of Space Charge Distribution in XLPE insulated Cable with a Temperature Gradient'*, Conference on Space Charge (CSC), Tours (France), 3-7 juillet **2006**
- CS- 5 F. Baudoin, S. Le Roy, G. Teyssedre and C. Laurent, *'Bipolar Charge Transport Model with Trapping and Recombination: Criticality of Model Parameters on the Steady State Solution'*, IOP Conference on charge transport in non-metallic Solids, London (U.K.), 2 avril **2008**
- CS- 6 F. Baudoin, S. Le Roy, G. Teyssedre et C. Laurent, *'Optimisation de paramètres : application aux modèles de transport de charges dans les diélectriques solides'*, Conférence Matériaux pour le Génie Electrique, Toulouse (France), mai **2008**
- CS- 7 V. Griseri, S. Le Roy, *'Behaviour of electron beam irradiated polymers: PEA measurements and simulations'*, Société Française d'Electrostatique, Paris (France), juillet **2008**
- CS- 8 M.Taleb, G. Teyssède, S. Le Roy, *'Modelling of a dielectric-metal interface with an exponential distribution of traps'*, Société Française d'Electrostatique, Montpellier (France), septembre **2010**
- CS- 9 B. Eismann, L.C. Pitchford, S. Le Roy, S. Pancheshnyi and L.A. Dissado, *'Secondary electron emission from dielectrics'*, International Workshop on Microplasmas (IWM-6), Paris (France), 3-6 avril **2011**

- CS- 10 N. Hitoum, S. Le Roy, G. Teyssedre and P. Molinié, '*Simulation of potential decay and return due to charge transport in a solid dielectric*', Third International Meeting on Dielectric Materials (IMDM3), Monastir (Tunisia) 14-18 December **2011**
  
- CS- 11 M. Taleb, S. Le Roy, G. Teyssedre and C. Laurent, '*Charge injection at metal/insulating polymer contact: a modelling approach based on an exponential distribution of surface states*', Third International Meeting on Dielectric Materials (IMDM3), Monastir (Tunisia) 14-18 December **2011**
  
- CS- 12 M.Q. Hoang, L. Boudou, S. Le Roy and G. Teyssedre, '*Electrical characterization of LDPE films using thermo-stimulated depolarization currents method: measurement and simulation based on a transport model*', Société Française d'Electrostatique, Cherbourg (France), juillet **2012**
  
- CS- 13 K. Makasheva, C. Villeneuve, S. Le Roy, B. Despax, L. Boudou, C. Laurent et G. Teyssedre, '*Nanoparticules d'argent comme centres de pièges profonds artificiels pour les charges dans une couche diélectrique*', Workshop du GDR NACRE (Nanocristaux dans des diélectriques pour l'électronique et pour l'optique), Toulouse (France), 8-10 Octobre **2012**
  
- CS- 14 G. Ranoux, B. Vissouvanadin, M. Molinari, S. Le Roy, G. Teyssedre, C. Laurent, X. Coqueret, '*Correlating structural and electrical properties of aromatic epoxy resin cationically cured by radiation*', International Symposium on Ionizing Radiation and Polymers (IRAP), Krakow, Poland, 15-21 Nov. **2012**
  
- CS- 15 G. Ranoux, B. Vissouvanadin, M. Molinari, S. Le Roy, G. Teyssedre, C. Laurent, X. Coqueret, '*Propriétés électriques de matrices à base de résines aromatiques époxyde et acrylate polymérisées sous rayonnement ionisant*', XIème Colloque de l'Association PolyRay, Rouen, 11-12 Avril **2013**

## E. CONFERENCES NATIONALES AVEC PUBLICATIONS (5)

- CNP- 1 S. Le Roy, G. Teyssedre, C. Laurent, P. Segur, '*Modélisation numérique des phénomènes de transport électrique dans le polyéthylène soumis à un courant continu*', Congrès Annuel de la Société Française d'Electrostatique, Toulouse (France), 3-4 Juillet 2003, **Proc. SFE 2002**, pp. 1-11, **2002**
  
- CNP- 2 T.T. N. Vu, G. Teyssedre, B. Vissouvanadin, S. Le Roy, C. Laurent, M. Mammeri, I. Denizet, '*Distribution de champ électrique dans des câbles modèles MV-HVDC sous gradient thermique: simulation et mesure de distribution de charges d'espace*', Symposium de Génie Electrique (SGE'14) EF-EPF-MGE 2014, Cachan (France), 8-10 Juillet 2014, **Proc. SGE 2014**
  
- CNP- 3 M-Q. Hoang, S. Le Roy, L. Boudou and G. Teyssède, '*Implementation of polarization processes in a charge transport model using time and frequency domain measurements on PEN films*', Société Française d'Electrostatique, Toulouse (France), 27-29 août 2014, **Proc. SFE 2014**, pp. 384-389
  
- CNP- 4 T.T.N. Vu, G. Teyssedre, S. Le Roy, Christian Laurent, '*Effet Maxwell-Wagner dans des multicouches: mesure et modèle de la charge d'interface*', Symposium de Génie Electrique (SGE'16) EF-EPF-MGE 2016, Cachan (France), 8-10 Juillet 2016, **Proc. SGE 2016**
  
- CNP- 5 M. E. Banda, V. Griseri, S. Le Roy, G. Teyssède, '*Mesures de charge d'espace sur du LDPE irradié par faisceau d'électron, avec et sans métallisation de la surface irradiée*', Société Française d'Electrostatique, Poitiers (France), 27-29 août 2016, **Proc. SFE 2016**

## F. CHAPITRES D'OUVRAGES (2)

- CO- 1 F. Baudoin, C. Laurent, S. Le Roy and G. Teyssedre, 'Mécanismes de conduction et modélisation numérique du transport dans les isolants organiques: tendances et perspectives', **Les matériaux diélectriques pour le génie électrique**, Ed. Hermès, Paris, Chap.4, 43p, **2007**

- CO- 2 F. Baudoin, C. Laurent, S. Le Roy and G. Teyssedre, 'Conduction mechanisms and numerical modeling of transport in organic insulators : trends and perspectives', **Dielectric Materials for Electrical Engineering**, Ed. ISTE and Wiley, London, U.K., Chap.3, 40p, **2010**

## G. SEMINAIRES INVITES (3)

- SI-1 S. Le Roy, '*Space charge and conduction modeling in cable insulation*', Facolta di Ingegneria dell' Universita di Bologna, Bologne (Italie), 10 novembre **2005**

- SI-2 S. Le Roy and F. Baudoin, '*Charge transport in solid organic dielectrics under electric stress*', Departamento de Matemática e Aplicações, Universidade do Minho, Guimarães (Portugal), 9 mai **2012**

- SI-3 S. Le Roy, F. Baudoin, G. Teyssedre and C. Laurent, '*Modelling charge transport and storage in polymeric insulating materials*, Workshop SMART-ELEC, Toulouse (France), 1 octobre **2015**

## H. RAYONNEMENT

### H.1. RESPONSABILITES CONFERENCES

- Société Française d'Electrostatique **SFE 2010**, Montpellier, France, 30-31 aout: *président session*
- IEEE International Conference on Solid Dielectrics **ICSD 2013**, Bologna, Italy, 30 juin - 4 juillet: *Membre du comité de programme*  
*Présidente session*
- Société Française d'Electrostatique **SFE 2014**, Toulouse, France, 27-29 aout: *comité local d'organisation*

### H.2. COLLABORATIONS UNIVERSITAIRES

- Nationales : Participation au Groupe de Recherche SEEDS : 'Systèmes d'Energie Electrique dans leurs Dimensions Sociétales', Socle Matériaux (G2ELAB, AMPERE, SUPELEC, IES... )
- Internationales:
  - Angleterre – L. Dissado J. Fothergill, Leicester University – théorie, transport de charges diélectriques
  - Japan – Y. Tanaka H. Miyake, Tokyo City University – mesures, irradiation, diélectriques
  - Tunisia – A. Kallel, LaMaCoP – modélisation, dissociation de charges
  - Portugal – S. Clain, U. do Minho - modélisation, aspects mathématiques et numériques
  - Egypte - Ahmed Hussayn – modélisation ab initio, modélisation interfaces /mesures à l'échelle nanométrique
  - Canada - J. H. Chang - modélisation ab initio, modélisation interfaces/mesures à l'échelle nanométrique

### H.3. ACTIVITE EDITORIALE

Relectrice régulière (~6 articles par an) pour :

- Journal of Physis D: Applied Physics,
- IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation,
- Journal of Applied Physics,
- Contribution to Plasma Physics
- The European Physical Journal - Applied Physics.

### H.4. CONSULTANCE – EXPERTISE – COMITES DE SELECTION

- Expert ponctuel pour l'ANRT (1 projet 2012, 1 projet en 2015)
- Expert ponctuel pour l'ANR (un projet 2018)

- 2 fois membre d'un comité de sélection pour un poste de Maître de Conférence à l'Université Paul Sabatier (UPS), Toulouse - section CNU 63 (2010 et 2013)
- 2 fois membre d'un comité de sélection pour un poste de Maître de Conférence à l'Université de Lyon, section CNU 63 (2015), et à l'Université de Poitiers, section CNU 63 (2017)

#### **H.5. RESPONSABILITES COLLECTIVES**

- Membre nommée du Conseil de Laboratoire (LAPLACE) de 2007 à 2010
- Membre élue du Conseil de Laboratoire (LAPLACE) de 2010 à 2013
- Membre du Collège Scientifique EEA de l'Université Paul Sabatier (UPS) de Toulouse de 2009 à 2013
- Correspondante LAPLACE pour 'the Amelia Earhart Fellowship' (Zonta International)
- Développement du site web de l'équipe 'Diélectriques Solides et Fiabilité' (DSF) du LAPLACE jusqu'en 2016.

#### **H.6. PARTICIPATION A DES JURYS DE THESES EXTERIEURES AU GROUPE**

- Mr Daniel Hernandez-Maldonado "Photovoltaïque Organique: étude de la morphologie de films minces, conception, synthèse et étude de petites molécules pour leur utilisation en hétérojonction en volume dans des dispositifs photovoltaïques" Université Paul Sabatier, Laboratoire de Chimie de Coordination – LCC, soutenue le 16/07/2015
- Mr Guillaume Belijar "Anisotropic composite elaboration and modeling: toward materials adapted to systems", Université Paul Sabatier, Laboratoire Plasma et Conversion d'Energie - LAPLACE, soutenue le 05/12/2016
- Anne Charlotte Amiaud, "Modélisation du transport électronique et de l'accumulation de la charge dans les isolants en couches minces ", Université Pierre et Marie Curie - UPMC et Thalès, soutenue le 13/02/2018
- Raphaël Guffond, "Caractérisation et modélisation de l'évolution de la microstructure de matériaux isolants pour câble sous fort champ électrique continu", Université Pierre et Marie Curie - UPMC et Nexans, soutenue le 06/03/2018
- Elena Kubyshkina, "Ab initio modelling of interfaces in nanocomposites for high voltage insulation", KTH Royal Institute of Technology in Stockholm, Sweden, soutenue le 04/05/2018



# LISTE DES MEMOIRES ET DIPLOMES DIRIGES

## A. DOCTORANTS:

### 1) M. Taleb (T- 1)

Pourcentage d'encadrement: 50%

Dates: 1/11/2007 au 30/10/2010 – Thèse soutenue le 07 juin 2011

Sujet: Phénomènes aux interfaces des isolants : mesure et simulation’.

Devenir: Ingénieur Chargée d'études expertise RTE

Publications: P-13, CPI-17, CPI-22, CS-8, CS-11

### 2) B. Vissouvanadin (T- 2)

Pourcentage d'encadrement: 20%

Dates: 1/11/2007 au 30/10/2010 – Thèse soutenue le 01 juin 2011

Sujet: Matériaux de câbles pour des applications au transport d'énergie HVDC

Devenir: Ingénieur études Altran

Publications: P-10, P-16, P-18, P-19, P-20, CPI-15, CPI-18, CPI-23, CPI-27, CPI-29, CPI-31, CPI-32, CPI-36, CNP-2

### 3) Quyen Mai Hoang (T- 3)

Pourcentage d'encadrement: 50%

Dates: 1/11/2011 au 30/10/2014 – Thèse soutenue le 10 décembre 2014

Sujet: Optimisation d'un modèle de transport de charges pour les diélectriques organiques sous contraintes électriques’

Devenir: Enseignant-Chercheur à Hanoi university of industry - département "Power system" Viet-Nam

Publications: P-17, P-22, P-26, CPI-33, CPI-44, CS-12, CNP-3

### 4) Amal Gargouri (T- 4)

Pourcentage d'encadrement: 80% (Cotutelle avec le LaMaCoP, Sfax, Tunisie)

Dates: thèse débutée le 1/11/2012

Sujet: 'Etude de la dynamique des charges d'espace dans les polymères synthétiques sous tension électrique: phénomènes de dissociation

Devenir: arrêtée au 1/10/2015

Publications: CPI-37

5) Maillys Banda (T- 5)

Pourcentage d'encadrement: 50%

Dates: 1/11/2014 au 30/10/2017 – Thèse soutenue le 01 décembre 2017

Sujet: 'Mesure et Modélisation du comportement de matériaux diélectriques irradiés par faisceau d'électrons'

Devenir: Post-doctorant au LAPLACE, équipe MDCE

Publications: P-27, CPI-39, CNP-5

6) Julien Cènes

Pourcentage d'encadrement: 50%

Dates: thèse débutée le 01/04/2016

Sujet: ' Vieillissement des isolants synthétiques sous contraintes continues'

Devenir: en cours

7) El Hadji Diaw

Pourcentage d'encadrement: 50%

Date: thèse débutée le 1/09/2017

Sujet: 'Modélisation des phénomènes physiques en jeu dans les câbles de transport aéronautique HVDC'

Devenir: en cours

## **B. MASTERS - STAGIAIRES**

1) Lucie Galloy-Gimenez

Pourcentage d'encadrement: 50%

Dates: février-septembre 2011 - Master soutenu le 5 septembre 2011.

Niveau: Master 2 Rayonnement Imagerie Médicale

Sujet: Dépôt d'électrons sur des échantillons Polyéthylène irradiés par faisceau d'électrons

Suite: Thèse CNES/CNRS LAPLACE (Toulouse) - CDI Puissance plus à MONTAUBAN

2) Nabil Hitoum

Pourcentage d'encadrement: 100%

Dates: février-septembre 2011 - Master soutenu le 15 septembre 2011.

Niveau: Master 2 Electronique biomédical (Université de Constantine, Algérie)

Sujet: Développement de simulation et d'outils d'analyse de mesures de potentiel de surface

Suite: Thèse de doctorat à l'Université de Constantine (Algérie)

Publications: CS-10

3) Julien Cènes

Pourcentage d'encadrement: 25%

Dates: février-septembre 2015 - Master financé par RTE

Niveau: Master 2 Ingénierie des Plasmas Matériaux

Sujet: ' Vieillissement des isolants synthétiques sous contraintes continues'

Suite: Thèse de doctorat Université Paul Sabatier Toulouse (partenariat RTE/Borealis/EDF/LAPLACE-DSF)

4) Vincent Ury

Pourcentage d'encadrement: 25%

Dates: février-septembre 2016 - Master en cours, financé par SAFRAN - Labinal

Niveau: Master 2

Sujet: 'Modélisation des phénomènes physiques en jeu dans les câbles de transport aéronautique HVDC'

Suite: CDi Alten

5) El Hadji Diaw

Pourcentage d'encadrement: 50%

Dates: février-septembre 2017 - Master en cours, financé par SAFRAN - Labinal

Niveau: Master 2 Energie Electrique : Electronique de puissance, actionneur et commande

Sujet: 'Modélisation des phénomènes physiques en jeu dans les câbles de transport aéronautique HVDC'

Suite: thèse Cifre LAPLACE/Safran

6) Benny Reinmart

Pourcentage d'encadrement: 50%

Dates: novembre 2017-juillet 2018

Niveau: Master 2 - étudiant indonésien

Sujet: 'Phénomènes de dissociation dans les isolants synthétiques de câbles pour application HVDC'

Suite: En cours



## PROGRAMMES DE COOPERATION ET CONTRATS

Je ne liste par la suite que les projets qui ont été financés ou en cours d'évaluation, et non tous les projets (financés ET non-financés) auxquels j'ai participé ou que j'ai porté. J'ai ajouté, en vert, mon rôle dans ces projets.

### A. PROJETS INTERNATIONAUX

- **Projet européen du 5ème PCRD**: '*Benefits of HVDC links in the European power electrical system and improved HVDC technology HVDC*', (HVDC), **2003-2006**, **post-doctorante**
- **ANR Internationale** (LAPLACE/Xi'an-China) - InTail : '*Maîtrise des interfaces pour le contrôle de l'injection de charges dans les polymères isolants électriques*', **2012-2015**, **Participante**
- **Projet interne GDR SEEDS** (LAPLACE, Cairo University), '*Caractérisation d'interfaces métal/diélectrique: mesures microscopiques et simulations micro et macroscopiques*', **2014-2015**, **Porteuse**
- **Projet européen H2020 Marie Skłodowska-Curie Actions - ITN (ETN)**: '*SmartElec: Towards a rational design of dielectrics for electrical engineering*', projet déposé en **2018**, **Participante**

### B. PROJETS NATIONAUX

- **ANR JCJC MATSPACE**, '*Nouvelles techniques d'analyse des phénomènes de charge dans les diélectriques en environnement spatial*', **2007-2010**, **Participante**
- **Projet interne GDR SEEDS**, '*Développement de modélisations et d'outils d'analyse de Mesures de potentiel de surface*', **2008**, **Porteuse**
- **ANR Mat&Pro ICIP** (ICMR, Schneider) '*Polymérisation induite par rayonnement: un nouveau procédé pour les isolants électriques à haute performance du Génie Electrique*', **2010-2013**, **Participante**
- **ANR JCJC UltimatePD**, '*Physique des décharges dans des cavités internes à un diélectrique et implication pour le vieillissement électrique des isolants et son diagnostic*', **2009-2012**, **Participante**
- **ANR JCJC ModElec**, '*Modélisation du transport de charges dans les diélectriques solides sous contraintes électriques et implication pour la fiabilité des matériaux dans les systèmes de conversion d'énergie*', **2011-2014**, **Porteuse**
- **ANR Emergence ElecNanoPrint** (LPCNO/LAPLACE), '*Nano-impression électrique pour la fabrication industrielle de capteurs à base de nanoparticules*', **2011-2013**, **Participante**

### C. PROJETS REGIONAUX

- **Projet Idex Transversalité** (LAPLACE/LAAS/LCPQ/LCC), *'DessinemoiOPV: Design, synthesis and set up of molecules for innovative organic photovoltaics'*, **2013-2015**, **Participante**

### D. PROJETS INDUSTRIELS

- Projet BIAS, collaboration TechImp, Borealis, LIMAT, LGET, **2001-2004**, **Participante (doctorante)**
- Projet collaboration R&T **CNES/LAPLACE/ONERA**, *'Phénomènes d'accumulation et de transport de charges dans les diélectriques irradiés'*, **2008-2010**, **Participante**
- Projet Industriel **SilecCable/LAPLACE**, *'Mécanismes contrôlant les propriétés d'interface dans les câbles pour le transport d'énergie HVDC'*, financement de la thèse B. Vissouvanadin, **2008-2011**, **Participante**
- Projet Industriel **ABB/LAPLACE**, *'Physics at Polymer insulation/conductive filler contact'*, financement de la thèse de F. Gullo, **2014-2017**, **Participante**
- Projet Industriel **RTE/EDF/Borealis/LAPLACE**, *'Vieillissement des isolants synthétiques sous contraintes continues'*, financement de la thèse de J. Cènes, **2014-2019**, **Porteuse**
- Projet Industriel **Safran / LAPLACE**, *'Modélisation des phénomènes physiques en jeu dans les câbles de transport aéronautique HVDC'*, financement sur bourse Cifre de la thèse de E. Diaw, **2017-2020**, **Porteuse**

## COPIES DE 5 PUBLICATIONS CHOISIES

- P- 4 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, pp. 1427-1436, **2006**.
  
- P- 13 M. Taleb, G. Teyssedre, S. Le Roy and C. Laurent, 'Modelling of Charge Injection and Extraction in a Metal/Polymer Interface through an Exponential Distribution of Surface States', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 20, pp. 311-320, **2013**.
  
- P- 20 T.T.N. Vu, G. Teyssedre, B. Vissouvanadin, S. Le Roy and C. Laurent, 'Correlating Conductivity and Space Charge Measurements in Multi-dielectrics under Various Electrical and Thermal Stresses', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 22, pp. 117-127, **2015**
  
- P- 11 S. Le Roy, G. Teyssedre and C. Laurent, 'Modelling space charge in a cable geometry', **IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.**, Vol. 23, pp. 2361–2367, **2016**
  
- P- 26 M.Q.Hoang, L. Boudou, G. Teyssedre and S. Le Roy, 'Modelling polarization and conduction processes in poly(Ethylene Naphthalate)', **Mater. Res. Express**, Vol. 4, 085304(8p), **2017**

