

MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEURE ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE  
UNIVERSITE MOULOU D MAMMERI, TIZI-OUZOU

FACULTE DES SCIENCES

DEPARTEMENT DE PHYSIQUE



## **THESE DE DOCTORAT**

SPECIALITE : PHYSIQUE

OPTION : PHYSIQUE DES MATERIAUX

présentée par :

**Fatiha TALBI**

Sujet :

**Etude des phénomènes de conduction et de rupture diélectrique dans les céramiques  
à haute teneur en alumine**

Devant le jury d'examen composé de :

Belhadi Mehand ;	Professeur ;	U.M.M.T.O ;	Président.
Lalam Fadila ;	Maître de conférences ;	U.M.M.T.O ;	Rapporteur.
Malec David ;	Professeur ;	Université P. Sabatier, France ;	Co-Rapporteur.
Lamrous Omar ;	Professeur ;	U.M.M.T.O ;	Examineur.
Handala Mohand Amokrane ;	Maître de conférences ;	U.M.M.T.O ;	Examineur.
Amroune Saidi Nadia ;	Professeur ;	U.S.T.H.B ;	Examineur.

Soutenue le : 18 / 02 / 2010



## **Remerciements**

*Ce travail de thèse a été réalisé dans le cadre d'un programme de coopération entre deux laboratoires : le laboratoire de physique et chimie quantique (LPCQ) de l'université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou (UMMTO) et le laboratoire Laplace de l'université Paul Sabatier de Toulouse.*

*Ma reconnaissance s'adresse tout d'abord à Madame Fadila Lalam, Maître de Conférences à l'UMMTO et directrice de thèse, pour la confiance qu'elle m'a accordée en me proposant ce sujet et pour tous les conseils qu'elle m'a donnés tout au long de ce travail.*

*J'exprime ma profonde gratitude à David Malec, Professeur à l'université Paul Sabatier, pour son accueil au laboratoire Laplace dans l'équipe Matériaux Diélectrique et Conversion Electrique (MDCE) et pour avoir mis tous les moyens nécessaires au bon déroulement de mes travaux.*

*Monsieur Mhand Belhadi, Professeur à l'UMMTO, nous a fait l'honneur de présider le jury de thèse, je lui adresse mes sincères et respectueux remerciements.*

*Je tiens à remercier vivement Madame Nadia Amroune Saidi, Professeur à l'université des Sciences et Technologie Houari Boumediène (USTHB), qui a accepté d'examiner ce travail et qui m'a fait l'honneur de participer au jury.*

*Monsieur Omar Lamrous, Professeur à l'UMMTO, a accepté d'examiner ce travail et a bien voulu faire partie du jury, je lui adresse mes sincères remerciements.*

*J'adresse aussi mes sincères remerciements à Handala Mohand Amokrane, Maître de Conférences à l'UMMTO, pour avoir accepté de faire partie du jury.*

*Je tiens à remercier le personnel technique du laboratoire Laplace particulièrement Benoit Schlegel pour son aide précieuse lors des différentes analyses et manipulations techniques. Je remercie également le personnel administratif du même laboratoire notamment Danielle Pugibet, actuellement en retraite, pour sa disponibilité et sa gentillesse.*

*Mes vifs remerciements vont aux membres de l'équipe MDCE, permanents et doctorants, pour leur aide, la bonne ambiance et la convivialité. Je remercie particulièrement mes camarades doctorants que j'ai côtoyés durant mon séjour au Laplace pour leur aide et leur gentillesse : Mandana, Michael, Van Hi, Axel et tous les autres.*

*Je remercie mes collègues du laboratoire de physique et chimie quantique, plus particulièrement mes amies et collègues Atika, Ouiza et Leila pour leur soutien, gentillesse et bonne humeur.*

*J'adresse mes remerciements les plus sincères à mes parents, pour qui les études sont une priorité, pour leur soutien indéfectible et leur encouragements.*

*Je remercie très chaleureusement mes sœurs et frères, avec qui je forme "l'équipe" qui m'est la plus chère, pour avoir été constamment présent par leurs conseils, bonne humeur et enthousiasme.*

*Enfin, je termine par un clin d'œil affectueux pour mes adorables nièces et neveux.*



# SOMMAIRE

---

Introduction .....	11
Chapitre I : Contexte et généralités .....	14
I.1. Contexte de l'étude.....	15
I.1.1. Composants de puissance .....	15
I.1.2 Structure des modules de puissance haute tension à IGBT .....	17
I.1.3. Substrat céramique .....	19
I.2. Généralités sur les céramiques .....	22
I.2.1. Etapes d'élaboration des céramiques.....	23
I.2.1.1. Préparation des matières premières.....	23
I.2.1.2. Mise en forme .....	24
I.2.1.3. Frittage .....	24
I.2.1.4. Finitions .....	24
I.2.2. Défauts dans les céramiques.....	26
I.2.2. 1. Défauts volumiques.....	26
I.2.2.2. Défauts surfaciques .....	26
I.3. Alumine ( $Al_2O_3$ ).....	27
I.3.1. Propriétés structurelles et chimiques .....	28
I.3.2. Propriétés électriques.....	29
I.3.3. Propriétés thermiques .....	32
I.3.4. Propriétés mécaniques .....	34
I.3.4. Défauts dans l'alumine .....	35
I.4. Conclusion.....	36
Chapitre II: Etude de la conduction électrique dans l'alumine .....	37
II.1. Courants transitoires et courants de conduction sous polarisation continue.....	38
II.1.1. Définition .....	38

II.1.2. Mécanismes de conduction d'origine électronique .....	39
II.1.2.1. Mécanismes de conduction régis par l'interface métal-isolant.....	39
II.1.2. 2. Mécanismes de transport contrôlés par le volume.....	41
II. 1.3. Mécanisme de conduction d'origine ionique .....	44
II.2. Etude expérimentale du courant de conduction .....	45
II.2.1. Matériau .....	45
II.2.2. Dispositif expérimental .....	46
II.2.3. Evolutions du courant de polarisation et de dépolarisation en fonction du temps ...	47
II.2.4. Détermination du courant de conduction .....	49
II.2.4.1. Courant de conduction sous faibles champs : Comportement ohmique.....	50
II.2.4.2. Courant de conduction sous champs forts : Comportement limité par la charge d'espace.....	50
II.2.4.3. Effet de la nature d'électrode sur la conduction .....	54
II.2.4.4. Effet de la pureté sur la conduction .....	55
II.3. Conclusion .....	56
Chapitre III : Rupture diélectrique de l'alumine .....	58
III.1. Rigidité diélectrique des isolants solides.....	59
III.1.1. Définition .....	59
III.1.2. Influence de divers paramètres sur la rigidité diélectrique .....	61
III.1.2.1. Tension appliquée.....	61
III.1.2.2. Température.....	63
III.1.2.3. Epaisseur .....	63
III.1.2.4. La charge d'espace .....	65
III.2. Traitement statistique de la rupture diélectrique .....	65
III.3. Mesure expérimentale de la rigidité diélectrique de l'alumine .....	67
II.3.1. Dispositif et protocole expérimentaux .....	67
III.3.2. Caractérisation de l'alumine .....	70

III.3.2.1. Analyse physico-chimique .....	70
III.3.2.2. Diffractométrie des rayons X .....	70
III.3.2.3. Composition chimique.....	71
III.3.2.4. Energie de surface .....	71
III.3.3. Résultats expérimentaux de la rupture diélectrique dans l'alumine .....	72
III.3.4. Evolution du champ électrique de rupture .....	78
III.3.4.1. Effet de l'épaisseur.....	78
III.3.4.2. Effet de la pureté .....	80
III.3.4.3. Effet de la vitesse de montée en tension.....	80
III.3.4. 4. Rupture de l'alumine monocristalline (saphir).....	81
III.3.5. Observation post rupture.....	83
IV. Conclusion.....	87
Chapitre IV : Etude du processus de rupture diélectrique dans l'alumine .....	88
IV.1. Mécanismes de rupture diélectrique dans les isolants solides.....	89
IV.1.1. Mécanisme de claquage électronique .....	90
IV.1.1.1. Claquage intrinsèque.....	90
IV.1.1.2. Claquage par avalanche.....	92
IV.1.2. Mécanisme de claquage thermique.....	94
IV.1.3. Mécanisme de claquage électromécanique.....	95
IV.2. Synthèse des travaux effectués sur l'origine de la rupture diélectrique dans les céramiques.....	98
IV.3. Proposition d'un mécanisme de rupture diélectrique .....	99
IV.4. Corrélation entre la formation du cratère et le processus de claquage diélectrique.....	101
IV.5. Simulation de la distribution du champ électrique et estimation de l'énergie électrique.....	105
IV.5.1. Paramètres de la simulation .....	106
IV.5.2. Exploitation des résultats .....	107
IV.5.2.1. Distribution du champ selon la configuration d'électrodes .....	107

IV.5.2.2. Détermination de l'énergie électrique en fonction de l'épaisseur.....	111
IV.6. Corrélation entre le renforcement mécanique et le renforcement diélectrique de l'alumine par la zirconne .....	115
IV.6.1. Phases de la zirconne .....	115
IV.6.2. Renforcement de l'alumine par transformation de phase de la zirconne (quadratique-monoclinique): transformation martensitique.....	116
IV.6.3. Elaboration des échantillons alumines et alumine-zirconne.....	118
IV.6.3.1. Mise en œuvre des poudres .....	118
IV.6.3.2. Frittage .....	118
IV.6.4. Caractérisation physico-chimique des échantillons.....	119
IV.6.4.1. Densité.....	119
IV.6.4.2. Microstructure .....	119
IV.6.4.3. Diffractométrie des rayons X.....	120
IV.6. 5. Etude de la rigidité diélectrique des échantillons .....	121
IV.7. Interprétation du processus de claquage diélectrique de l'alumine.....	123
IV.8. Modélisation de la rupture diélectrique dans l'alumine .....	125
IV.9. Conclusion.....	130
Conclusion générale .....	133
Références bibliographiques.....	138



# Introduction

Les céramiques sont utilisées dans divers domaines en raison du large éventail de propriétés physiques remarquables qu'elles peuvent présenter (électriques, mécaniques, optiques, piézoélectriques, ferroélectriques, magnétiques,...). Les céramiques à base d'alumine avec une teneur d'alumine supérieure à 90% sont prisées pour des applications industrielles haute tension en électronique de puissance. Elles sont utilisées comme substrat dans les modules de puissance haute tension. Elles ont pour fonction d'assurer l'isolation électrique entre la partie active (diodes et transistors) et la semelle dans un module de puissance haute tension et de faciliter l'évacuation de chaleur générée au cours du fonctionnement de ces composants. Elles présentent une bonne tenue électrique, conductivité thermique et résistance mécanique. Comparé à l'alumine, le nitrure d'aluminium (AlN) présente une meilleure tenue en tension et conductivité thermique mais son coût reste élevé. Dans un secteur où le facteur économique est important, le choix de l'alumine pour assurer la fonction d'isolation dans les modules de puissance s'avère alors un bon compromis entre ses propriétés physiques et son coût économique.

Le bon fonctionnement des modules de puissance dépend fortement de la fiabilité des matériaux utilisés pour remplir la fonction d'isolation, notamment du substrat isolant. L'avènement de nouvelles technologies et la disponibilité de puces semi-conductrices ayant des performances supérieures à celles en Silicium (Si) permet d'envisager l'apparition de modules de puissance (convertisseurs de puissance) qui seraient capable de repousser les limites des performances pratiquement atteinte avec la filière Si, notamment en terme de tenue en tension. Cependant, ces performances s'accompagnent par l'apparition de contraintes électriques et thermiques encore plus sévères. Dans un tel environnement, le substrat d'alumine se trouve l'élément du module qui subit le plus de contraintes principalement de nature électrique pouvant conduire à un phénomène catastrophique qui cause la perte des propriétés isolantes du matériau appelé claquage diélectrique. Les mécanismes à l'origine de cette dégradation sont complexes et parfois indissociables les uns des autres.

Comparé aux matériaux organiques tels que le polyéthylène, les études effectuées sur l'alumine sont moins nombreuses. Jusqu'à présent aucune d'entre elles n'a apporté des réponses sur le mécanisme de claquage diélectrique en concordance avec les différentes constatations expérimentales. L'enjeu, après avoir étudié l'évolution des propriétés électriques de ces matériaux dans des conditions particulières de fonctionnement, est donc d'identifier le mécanisme qui est à l'origine de l'initiation de la rupture diélectrique dans l'alumine.

L'objectif de cette thèse est l'étude du mécanisme de conduction et de la rigidité diélectrique des céramiques à base d'alumine d'une part, l'identification du mécanisme à l'origine du claquage et l'interprétation du processus de la rupture diélectrique de l'alumine de l'autre. A partir d'observations et de mesures expérimentales, des hypothèses sur le mécanisme de rupture seront développées et seront confrontées aux analyses des résultats expérimentaux afin de valider le mécanisme de rupture le plus probable.

Cette thèse est présentée en quatre chapitres :

Le premier chapitre concerne en premier lieu la présentation du contexte dans lequel cette étude est effectuée ; à travers l'identification des différents matériaux constituant les modules de puissance haute tension tels que les IGBT (Insulated Gate Bipolar Transistor) qui connaissent une utilisation croissante dans les systèmes de conversion de l'énergie électrique, il apparaît que le substrat céramique est l'élément du module subissant le plus de contrainte. En deuxième lieu, nous présentons les différentes propriétés des céramiques en générale et de l'alumine en particulier.

Le deuxième chapitre est consacré à l'étude du mécanisme de conduction des céramiques à haute teneur en alumine (96% et 99,5%). Dans le but d'attribuer un mécanisme de conduction correspondant au comportement de l'isolant face à la présence de charges en son volume et/ou en surface à l'approche de la rupture, il a été nécessaire d'effectuer des mesures pour des valeurs élevées du champ électrique, proches du champ de rupture. Par ailleurs, la température et la nature des électrodes utilisées sont les autres paramètres considérés dans ces mesures de conduction.

Dans le troisième chapitre, nous présentons les mesures de rigidité diélectrique de l'alumine qui ont été effectuées à température ambiante sous fréquence industrielle de 50 Hz. En raison du caractère aléatoire du phénomène de rupture diélectrique la statistique de Weibull a été utilisée pour déterminer les champs de rupture. Les mesures ont été faites en

fonction de divers paramètres tels que l'épaisseur, le degré de pureté et la vitesse de montée en tension. Nous compléterons cette étude par des observations optiques et au MEB de la morphologie de la rupture et sa caractéristique en fonction des paramètres pris en considération dans les expériences.

Dans le dernier chapitre, dans un premier temps, les théories de rupture seront détaillées et analysées afin de trouver une corrélation entre ces théories et les mesures expérimentales présentées dans le deuxième et troisième chapitre. Un scénario de rupture basé sur un mécanisme de claquage d'origine électromécanique est proposé et appuyé par une simulation qui nous renseigne sur la distribution du champ électrique à l'intérieur du matériau ainsi que l'énergie électrique stockée au moment de la rupture. Par ailleurs, les mesures de la rigidité diélectrique des échantillons de l'alumine et de composite alumine/zircone élaborés seront comparées et interprétées à la lumière de leurs caractéristiques mécaniques respectives dans le but de valider le mécanisme de claquage proposé.

# **Chapitre I : Contexte et généralités**

## I.1. Contexte de l'étude

L'utilisation des systèmes de l'électronique de puissance a connu une forte progression ces vingt dernières années. Leur domaine d'application devient de plus en plus vaste, allant de faibles puissances inférieures à 1 Watt à de fortes puissances de plusieurs méga Watt [ALL 06]. Dans le domaine de forte puissance, les applications de l'électronique de puissance couvrent de nombreux secteurs industriels tels que l'aviation, le transport ferroviaire, la distribution électrique,...

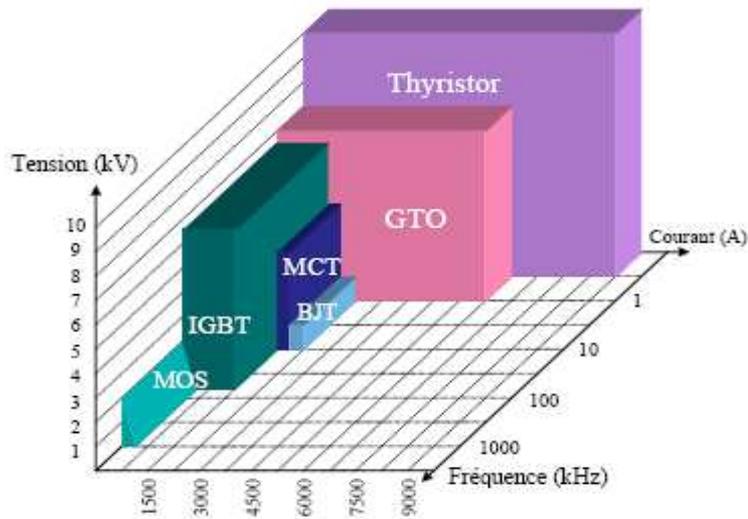
L'électronique de puissance a pour but la conversion de l'énergie électrique selon le besoin et son utilisation. La conversion de l'énergie électrique se fait avec des dispositifs appelés convertisseurs statiques. Pour obtenir un maximum de rendement, l'électronique de puissance impose une électronique de commutation, le fonctionnement des convertisseurs de puissance se rapproche donc d'un interrupteur parfait. Un convertisseur statique se décompose en trois niveaux : le niveau composant (éléments actifs semi-conducteurs), le niveau structure et le niveau commande.

### I.1.1. Composants de puissance

Il existe plusieurs types d'éléments de puissance avec des performances variées au niveau de la tenue en tension, la rapidité de commutation et les pertes en conduction. On peut distinguer les composants dont les commutations sont spontanées : diodes, et ceux dont les commutations sont commandées tels que les transistors bipolaires BJT, les transistors à effet de champ MOSFET, les transistors à grille isolée IGBT (insulated gate bipolar transistor) et les thyristors blocable GTO. La figure I.2 illustre les différents composants existant suivant leur tension et courant d'utilisation.

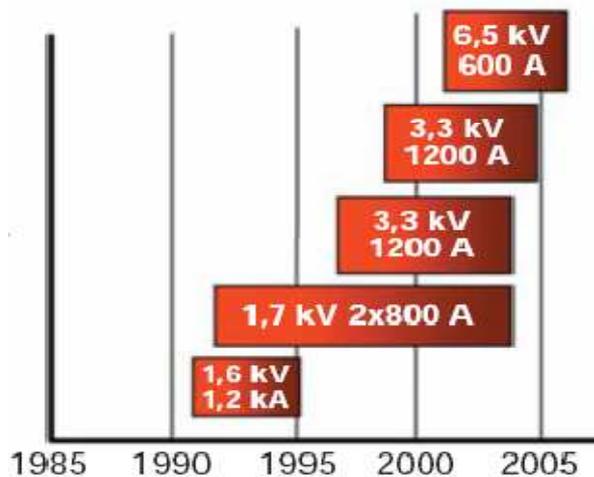
La spécificité du domaine des fortes puissances réside dans la gamme en courant et la gamme en tension utilisées. Dans le domaine des fortes puissances tel que le domaine ferroviaire, l'appariation des transistors IGBT associant les avantages du transistor bipolaire BJT et les avantages en commutation du transistor MOSFET, a permis de remplacer les thyristors blocable GTO. En effet, depuis quelques années, l'IGBT s'est imposé comme une alternative efficace comparée à ces derniers (GTO) car il présente une grande capacité en courant et une tenue en tension en constante amélioration. Par ailleurs, le développement de ces composants à grille a permis d'une part de passer d'une commande en courant à une

commande en tension de mise en œuvre plus simple et d'autre part de diminuer les pertes électriques [BAL 96].



**Figure I.1 :** Les différents composants existants suivant leur tension et courant d'utilisation [VAN 06].

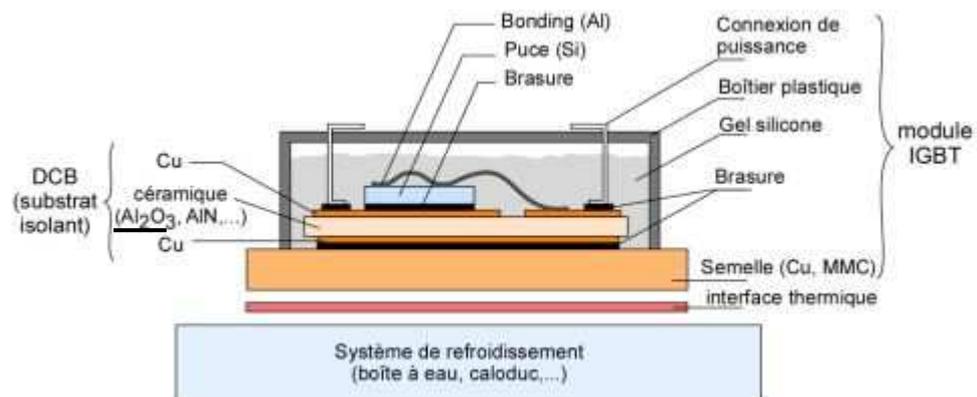
L'apparition des composants de puissance IGBT a imposé l'utilisation de technologie hybride pour la réalisation des modules de puissance à IGBT. Ces derniers sont commercialisés vers la fin des années 80 et destinés pour des applications faibles puissances. Aujourd'hui, ils couvrent une large gamme, moyenne et forte puissance, allant d'une dizaine à quelques centaines d'ampères et de 300V à 6500V [BER 00]. Leur évolution au cours de ces quinze dernières années a connu une avancée remarquable avec des tensions de fonctionnement passant de 1,6 à 6,5 kV (figure I.2).



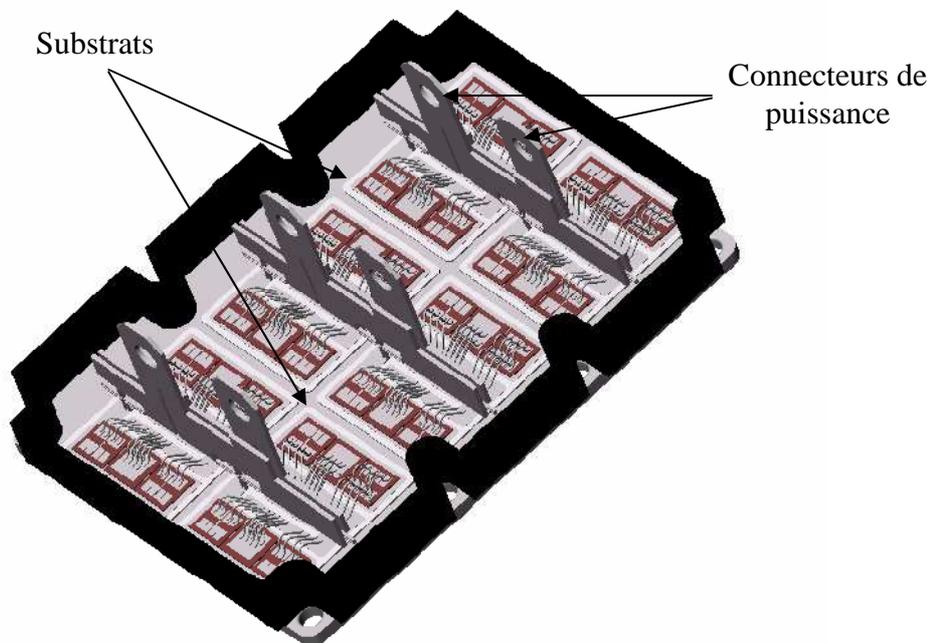
**Figure I.2 :** Evolution des transistors IGBT [CHA 08].

### I.1.2 Structure des modules de puissance haute tension à IGBT

Différents matériaux sont utilisés pour réaliser l'association des puces semi-conductrices (IGBT, diode). L'empilement des différents éléments et matériaux dans un module de puissance haute tension à IGBT est schématisée sur la figure I.3.



**Figure I.3.a** : Coupe schématique d'un module de puissance haute tension monté sur un radiateur [ZEA 08a].



**Figure I.3.b** : Module de puissance à IGBT ouvert [BRE 03].

Un module de puissance Haute Tension à IGBT est structuré autour d'un substrat en céramique. Celui-ci est doté de pistes conductrices assurant les contacts électriques entre les IGBT et leurs diodes associées. Des liaisons par fils (bonding) d'aluminium assurent également certaines de ces fonctions. L'ensemble est noyé dans un gel diélectrique ayant pour fonction d'une part de renforcer l'isolation électrique, et d'autre part, de préserver le composant semi-conducteur des agressions extérieures (humidité, vibrations, choc,...). Afin d'assurer un fonctionnement des puces au dessous de la température critique, le module de puissance est refroidi à l'aide d'un radiateur thermique par l'intermédiaire d'une semelle métallique sur laquelle est fixé le substrat céramique. Les brasures sont aussi utilisées pour assembler les puces semi-conductrices ainsi que les connexions de puissance sur la partie supérieure du substrat isolant.

Le substrat isolant utilisé dans les modules de puissance est généralement constitué d'un isolant dont les surfaces supérieure et inférieure sont métallisées. Son rôle principal est d'isoler électriquement la semelle des puces semi-conductrices et également des bornes de connexion de puissance.

Jusqu'à présent, la majorité des composants de puissance était réalisée à partir du semi-conducteur au silicium (Si), mais ce dernier commence à être remplacé par un matériau ayant de meilleures propriétés, le carbure de silicium (SiC) [NAK 07]. Ainsi, depuis quelques années de nouveaux composants en SiC, comme par exemple les diodes Schottky, sont apparues sur le marché et ont montré de meilleures performances par rapport à ceux en Si [ELA 03].

En effet, la valeur du champ électrique de claquage de SiC, dix fois plus élevé (~200 kV/mm) que celui du silicium (~20 kV/mm), permet une forte augmentation de la tenue en tension. Cela confèrent au SiC des atouts incontestables pour l'obtention de composants haute tension avec des vitesses de commutation améliorées entraînant peu de pertes en conduction. Par ailleurs, la large bande interdite relative de SiC, 3 eV, le rend moins sensible à la température et sa conductivité thermique élevée lui permet d'évacuer plus facilement la chaleur. En conséquence, ces deux aspects lui offrent des potentialités à fonctionner à très haute température (>600°C). Certaines études ont montré qu'avec le SiC, il a été possible de passer d'une tenue en tension de 1 kV pour un MOSFET en Si à une tenue en tension de 10 kV pour un MOSFET en SiC ayant une résistance à l'état passant plus faible. De même les IGBT en SiC sont pressentis à développer des potentialités en termes de tenue en tension

assez considérables. Ils resteront toujours un bon compromis entre le MOFSET et le thyristor pour des applications 10-20kV.

Le développement de l'électronique de puissance ne tient pas qu'à l'avènement de nouvelles technologies et l'apparition sur le marché des puces plus performantes, notamment des puces en SiC, mais reste limité par la qualité des substrats utilisés ainsi que par la qualité d'autres matériaux qui se trouvent dans l'environnement des semi-conducteurs [SOM 07]. En effet, ces composants de puissance haute tension étant des composants verticaux (tenue en tension dans le volume), le substrat est l'élément du module subissant le plus de contraintes, essentiellement de nature électrique et thermique. Le problème consiste donc à interpréter et modéliser les mécanismes régissant son comportement diélectrique dans des conditions extrêmes de fonctionnement, afin de pouvoir lui conférer une rigidité diélectrique plus élevée mais également une durée de vie appréciable. Cela s'avère encore plus nécessaire car ces modules de puissance seront amenés à évoluer dans le futur vers des tensions de fonctionnement encore plus élevées.

### **I.1.3. Substrat céramique**

A priori de nombreux matériaux organiques et inorganiques sont disponibles et potentiellement utilisables pour des applications haute tension. Les études de fiabilité réalisées sur les substrats organiques démontrent une limite de température d'utilisation inférieure à 180°C, voir 260°C pour les solutions polyamides. Par ailleurs, associé aux éléments actifs donc à des cycles de température de fortes amplitudes ces matériaux se trouvent fragilisés.

L'autre option qui consiste en l'utilisation de matériaux inorganiques présente de meilleurs avantages. En effet, l'isolation électrique par un substrat céramique métallisé permet de développer des systèmes aux spécifications électriques et thermiques adaptées aux besoins de l'intégration de puissance. Le développement de ces technologies est principalement lié aux spécificités de l'électronique de puissance [LEB 03], notamment au besoin de gérer des flux thermiques importants et d'assurer une excellente isolation électrique avec une bonne fiabilité lors du cyclage thermique.

Le principe consiste à associer à chacune des deux faces du matériau isolant céramique de fines couches métalliques de l'ordre de quelques dizaines de micromètre. Le type de substrat céramique métallisé le plus répandu dans les modules de puissance est le DCB (Direct Copper Bonding). Il est constitué d'une céramique sur laquelle est déposée sur

chacune des deux faces une fine métallisation en cuivre d'épaisseur égale à 300  $\mu\text{m}$ . Une autre technologie de substrat céramique DAB (Direct Aluminium Bonding) qui consiste à remplacer la métallisation en cuivre par une métallisation en aluminium est apparu afin de palier aux défaillances rencontrées avec les DCB [LIN 04]. En effet, durant des cycles de température extrême, le substrat métallisé DCB subit des contraintes thermomécaniques liées aux différences entre les coefficients d'expansion thermique des métallisations en cuivre et de la céramique. Cela se traduit par l'augmentation des contraintes mécaniques pouvant atteindre ou dépasser la résistance mécanique du matériau. On assiste alors au décollement de la métallisation et à la fissuration de la céramique. Plusieurs études [PEI 08, ZEA 08b] ont été amorcées dans ce sens et dont le but est de proposer une approche de prédiction de la durée de vie et de la fiabilité afin d'aboutir à l'optimisation de la conception des modules de puissance.

En outre, parmi les phénomènes survenus dans cette partie du module de puissance et pouvant porter atteinte à sa fiabilité est l'apparition des décharges partielles [FAB 04]. Ce phénomène peut être amplifié par la présence des défauts géométriques des métallisations ou par l'existence de vacuoles entre les métallisations et la céramique. Ces vacuoles peuvent survenir au cours du processus d'élaboration du substrat.

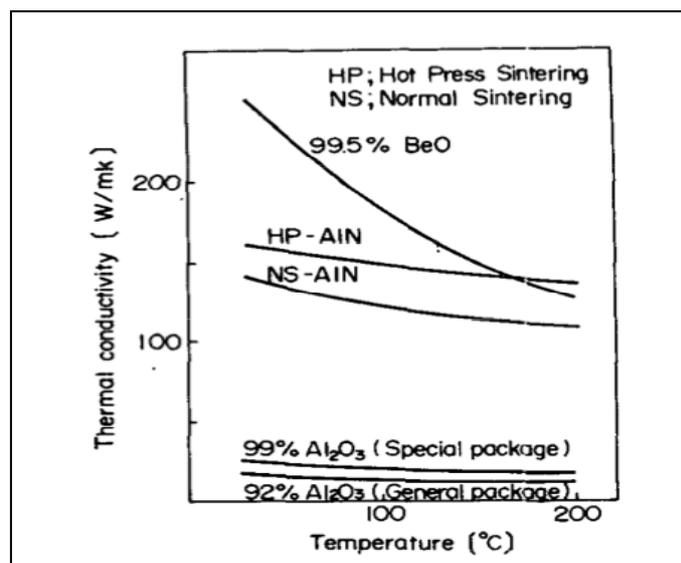
Il existe plusieurs alternatives pour le choix de la céramique dans des applications en électronique de puissance et vu son rôle important dans la fiabilité des modules de puissance, des études se sont développées autour de ce thème [BRE 00, BRE 03].

Les céramiques les plus utilisées actuellement comme substrat dans les composants de puissance sont le nitrure d'aluminium (AlN) et l'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ). Le premier présente une meilleure rigidité diélectrique et conductivité thermique (entre 150 et 250 W/mK) par rapport à l'alumine mais ce dernier reste le moins onéreux. Ainsi, il est couramment utilisé dans les applications de puissance où le facteur économique est important. Les principales performances à température ambiante de la nitrure d'aluminium et de l'alumine ainsi que d'autres céramiques telles que le nitrure de silicium et de l'oxyde de béryllium susceptibles de remplir la fonction du substrat dans les composants de puissance, sont reportées dans le tableau I.1. Signalons que du fait de la toxicité de l'oxyde de béryllium, son utilisation reste très restreinte.

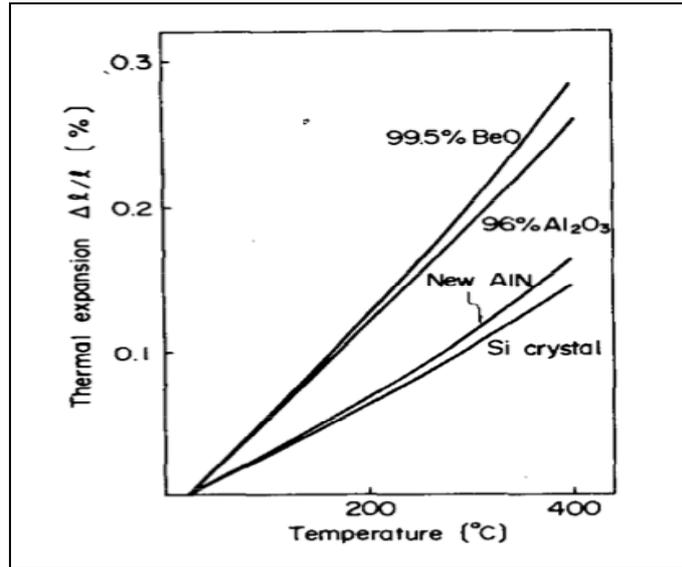
**Tableau I.1** : Principales caractéristiques de quelques céramiques utilisées en électronique de puissance [BRE 03, DUP 06].

	AlN	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiC	BeO
Conductivité thermique (W/mK)	260	20/30	270	250
Module de Young (GPa)	300/310	300/400	380	300/350
Constante diélectrique (à 1 Mhz)	8.8	9.8	40	6.5
Résistivité électrique à 300K (Ωm)	10 <sup>14</sup>	10 <sup>13</sup>	10 <sup>13</sup>	10 <sup>14</sup>
Champ de claquage (kV/mm)	14/17	11/16	0.7	10/14

L'évolution de certaines performances telles que la conductivité thermique et le coefficient d'expansion thermique en fonction de la température est illustrée sur les figures I.4.a et I.4.b respectivement.



**Figure I.4.a** : Evolution de la conductivité thermique de BeO, AlN et Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> en fonction de la température [KUR 85].



**Figure I.4.b :** Evolution du coefficient de dilatation thermique de BeO, AlN et Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> en fonction de la température [KUR 85].

## I.2. Généralités sur les céramiques

La définition la plus commune et répandue dans la littérature pour la céramique est la suivante : une céramique est un matériau inorganique et non métallique, polycristalline présentant une structure complexe de grains et de joints de grains. Cependant le terme céramique d'origine grec qui signifie poterie, qualifie avant tout une technique de fabrication, qui partant d'un choix des matières premières de bases permet d'aboutir à un matériau massif. L'élaboration de ces matériaux passe par de différentes étapes aussi importantes les unes que les autres, qui permettent aux produits finaux d'acquérir des propriétés physiques, mécaniques et chimiques bien définies.

La maîtrise des techniques d'élaboration des matériaux céramiques confère à ces dernières des propriétés qui peuvent être très différentes les unes des autres. Par conséquent elles sont utilisées pour des besoins qui peuvent être contradictoires en fonctions des ajouts-dopants. Des éléments de ces ajouts-dopants se substituent à ceux du réseau cristallin ou bien forment des secondes phases dans la matrice. En effet, la céramique est la seule classe où on trouve les trois types de matériaux à savoir céramiques conductrices, semi-conductrices et isolantes.

## **I.2.1. Etapes d'élaboration des céramiques**

Les étapes d'élaboration des céramiques restent globalement les mêmes quelque soient les propriétés et les fonctions recherchées et elles se présentent comme suit :

### **I.2.1.1. Préparation des matières premières**

Il existe deux méthodes pour parvenir à la synthèse des matières :

#### **I.2.1.1.1. Préparation par voie solide**

La première est une préparation par voie solide pour laquelle on utilise des matières premières pulvérulentes. Ces dernières sont constituées d'oxydes, de carbonates, de nitrates. Une poudre idéale peut être décrite comme étant formée de grains de petite taille, de forme régulière avec une répartition de taille très serrée, de pureté ainsi que de dopage contrôlé. Cette étape permet la dispersion des agglomérats de grains dont sont généralement formées les poudres minérales. Elle est complétée par les opérations suivantes :

- **Mélange - Broyage**

Cette étape a pour but de broyer les matières premières et essentiellement de mélanger les divers constituants tel que : matériaux de base, chamottes, liants organiques, ajouts divers. Généralement, le broyage est effectué en milieu humide.

- **Chamottage (calcination)**

Cette opération consiste à faire subir aux matériaux pulvérulents un cycle thermique au cours duquel ils vont former la phase cristalline recherchée.

#### **I.2.1.1.2. Préparation par voie chimique**

Il existe plusieurs méthodes de préparation de poudres par voie chimique. La plus utilisée est la préparation par voie chimique sous pression atmosphérique normale. Elle regroupe un ensemble de techniques de synthèse dont l'idée consiste à former des précipités ou des gels à partir d'une solution homogène contenant les cations désirés ( $Al^{+3}$ ,  $Zr^{+4}$ ,  $Mn^{+4}$ , ...) puis à calciner ces précipités pour former la phase et la microstructure recherchée. Par exemple, le titanate de baryum, matériau particulièrement important dans l'industrie des composants électroniques céramiques, peut être synthétisé par de telles techniques. Dans la majorité des cas, ces méthodes de synthèse permettent d'obtenir des poudres dont les caractéristiques (finesse, homogénéité, frittabilité...) sont nettement supérieures à celles obtenues par chamottage.

### **I.2.1.2. Mise en forme**

Il existe plusieurs méthodes de mise en forme : coulage, extrusion, pressage isostatique. Le choix de la méthode dépend essentiellement de la nature et de la structure géométrique du composant recherché. Par exemple le pressage isostatique est utilisé pour obtenir des céramiques de microstructure très homogène et dense qui peuvent servir pour des applications en électronique (comme le substrat d'alumine) ou pour des applications où la résistance mécanique est importante (prothèses biomédicales).

### **I.2.1.3. Frittage**

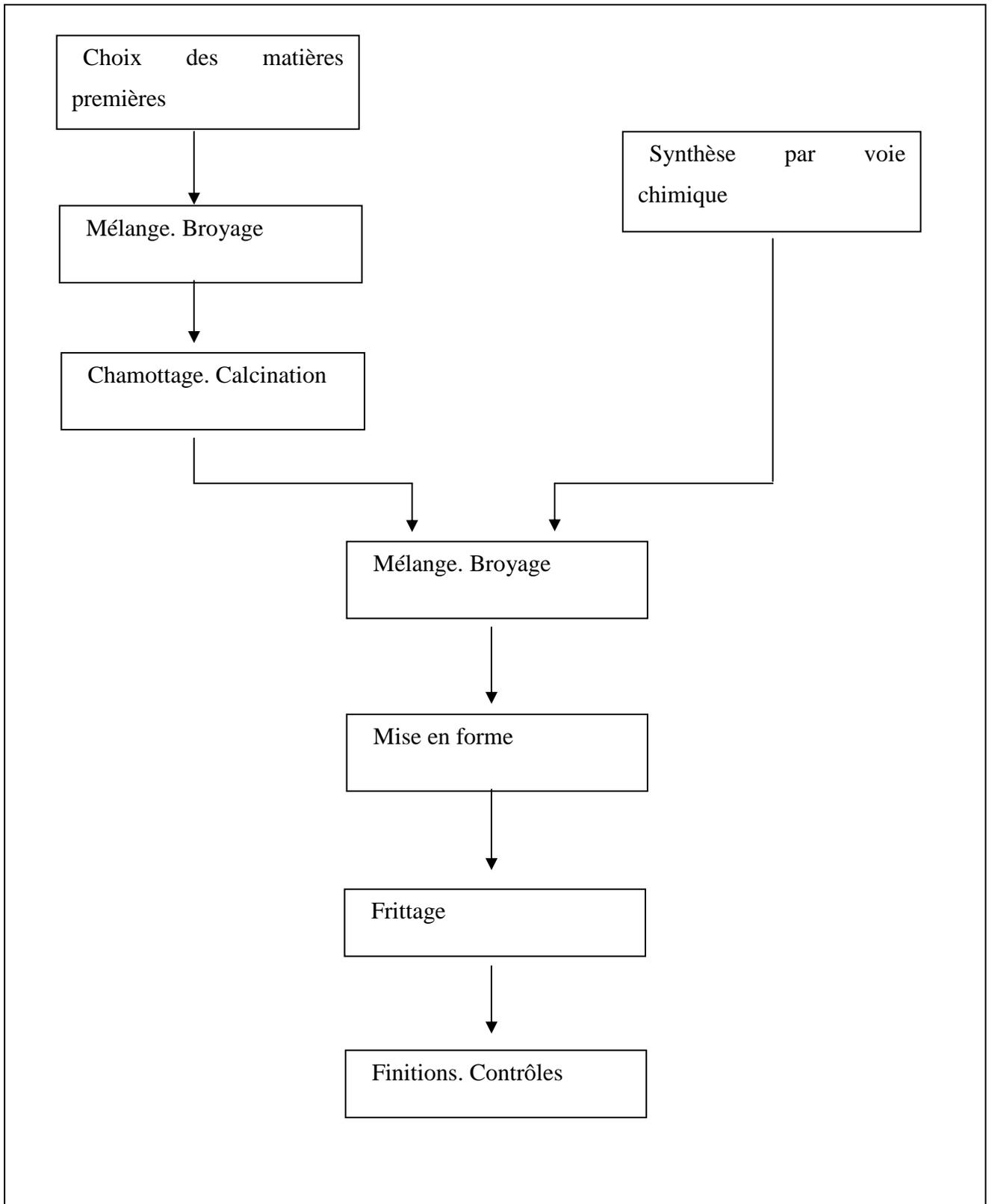
Le frittage consiste en la consolidation par action de la chaleur d'un agglomérat granulaire plus au moins compact. Cette consolidation peut se faire avec ou sans fusion de l'un des constituants. Par ailleurs, cette opération permet l'élimination des adjuvants organiques lors des premiers moments de l'action de la chaleur. Il existe plusieurs techniques de frittage. La plus connue est celle du frittage naturel. Il est effectué par simple chauffage à haute température d'une poudre comprimée.

### **I.2.1.4. Finitions**

Pour que le produit final soit prêt pour l'utilisation, il doit encore subir plusieurs transformations et/ou rectifications. Pour les composants électroniques céramiques passifs, les finitions consistent en des usinages, des poses d'électrodes (par trempage, peinture ou sérigraphie suivie de cuisson), des poses de connexions (par soudure électrique, ...),...

La succession des différentes étapes d'élaborations des céramiques est résumée dans le tableau I. 2.

**Tableau I.2 :** Différentes étapes d'élaboration des céramiques [HAU 96].



### I.2.2. Défauts dans les céramiques

Les matériaux fragiles tels que les céramiques sont imparfaits et contiennent des défauts. Ceux-ci sont à l'origine de la dégradation de leurs propriétés physiques et de la rupture. Ils sont distribués d'une manière aléatoire dans le matériau. Parfois ces défauts sont désignés par le terme "défaut de Griffith" et présentent une forme et une géométrie bien définie. Ils sont souvent assimilés à des formes elliptiques qui concentrent les contraintes au point de courbure le plus petit.

On peut classer les défauts dans les céramiques en deux grandes catégories selon leur localisation et distribution spatiale [QUI 07] :

Défauts volumiques

Défauts surfaciques

#### I.2.2. 1. Défauts volumiques

Parmi les défauts de volume les plus répandus dans les céramiques, on peut citer :

- **Pores** : Ils sont assimilés à des cavités discrètes dans le volume
- **Inclusions** : Ce sont des corps étrangers avec une composition différente de la composition de base des céramiques. Les effets de ces inclusions sur le matériau dépendent de leurs propriétés physiques (élastique, thermique, électrique,...)
- **Inhomogénéité du matériau** : Caractérisé par des irrégularités microstructurales en relation avec la non-uniformité de la distribution des constituants primaires, les additives ou la seconde phase.
- **Taille de grain** : La taille des grains peut être considérée comme un défaut si un grain ou un cluster de grain présente des tailles significativement plus grandes que la distribution normale de la taille des grains.

#### I.2.2.2. Défauts surfaciques

Les défauts de surface se résument essentiellement à des vides ou à des cavités de surface : ils sont similaires à des pores et ne diffèrent d'eux que par la localisation ; les pores surviennent en volume alors que les vides en surface. Parmi les défauts de surface, il y a aussi les fissures introduites par le coupage et l'usinage de ces matériaux et qu'on peut réduire voir éliminer avec l'utilisation progressive de rectifieuse fine et des étapes de polissage.

La distinction des différents défauts est importante pour l'étude des matériaux fragiles tels que les céramiques car la détermination expérimentale de certaines grandeurs physique ou mécanique telle que la contrainte à la rupture se caractérise par une dispersion des valeurs mesurées. Cette dispersion est souvent liée au caractère aléatoire de la présence des défauts dans ces céramiques. De plus, plusieurs études effectuées, ont montré que les grandeurs physiques ou mécanique (conductivité électrique, pertes diélectrique, résistance à la rupture, ...) sont nettement influencées par ces défauts (pores, les inclusions, la taille des grains, ...).

D'un point de vue microscopique (à l'échelle atomique), on peut classer aussi les défauts selon la géométrie ou les dimensions du défaut lui-même ; on peut citer les défauts ponctuels, défauts linéaires, défauts surfaciques.

Les défauts ponctuels sont des défauts dont la dimension est de l'ordre atomique. Les principaux défauts ponctuels sont les lacunes, les interstices et les impuretés. La lacune n'est autre qu'un défaut résultant de l'absence d'un atome sur un nœud du réseau cristallin qui normalement devrait être occupé. Elle permet d'expliquer le mécanisme de diffusion dans les solides. L'interstice est un atome supplémentaire qui vient s'insérer dans un vide du réseau entre les atomes.

Afin de conserver la neutralité électrique locale dans les cristaux ioniques les défauts ponctuels se trouvent toujours par paires. Ainsi deux lacunes de charges opposées forment le défaut de Schottky et une paire de lacune interstice constitue le défaut de Frenkel.

Les impuretés sont dues à la présence d'atomes étrangers, soit en substitution d'un atome du réseau soit en interstitiel, ou sous forme d'agrégats appelés aussi "cluster".

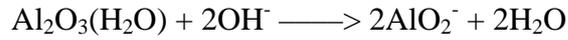
### **I.3. Alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )**

L'alumine est le terme générique donné aux oxydes d'aluminium de formule chimique  $\text{Al}_2\text{O}_3$  qu'ils soient anhydres ou hydratés, cristallisés ou amorphes, sans distinction des phases présentes. En plus des applications en électronique de puissance, l'alumine est utilisée dans de nombreux autres domaines pour des applications très variées (écran thermique, protection nucléaire, prothèses médicales,...)

A l'état naturel, l'alumine se trouve dans la bauxite sous forme d'hydrate : monohydrate ( $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot (\text{H}_2\text{O})$ ) et tryhydrate ( $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot (\text{H}_2\text{O})_3$ ). On la trouve aussi comme minerai, le corindon dit aussi alumine- $\alpha$ .

Le procédé le plus utilisé pour extraire l'alumine de la bauxite est le procédé de Bayer, il est basé sur la dissolution de l'alumine provenant de la bauxite.

A chaud, la soude ( $\text{NaOH} \rightarrow \text{Na}^+ + \text{OH}^-$ ) dissout l'alumine selon les réactions ci-dessous, alors que les impuretés (oxydes de fer et oxydes divers mis à part la silice) restent insolubles :

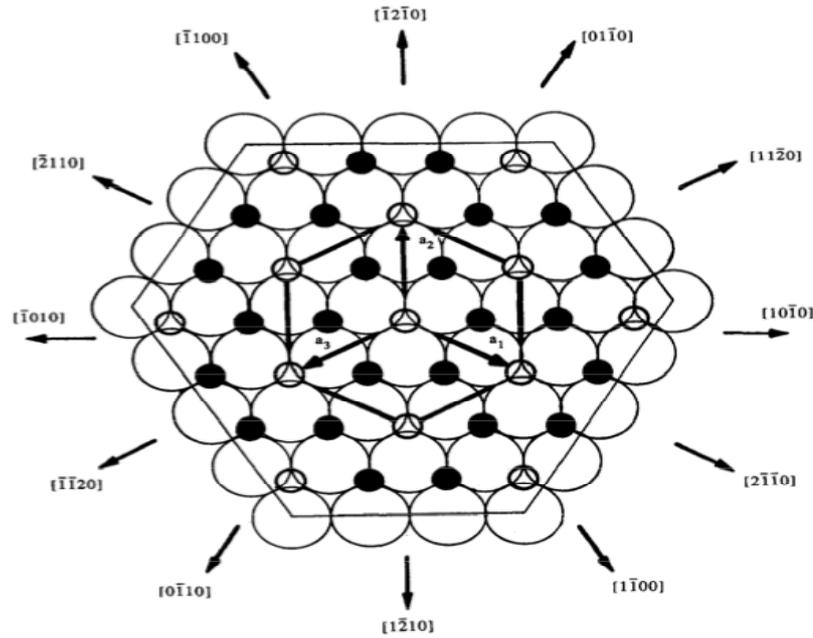


Les impuretés sont séparées de la liqueur d'alumine par décantation et filtration. En refroidissant et en diluant la liqueur, la réaction est inversée. Il y a précipitation d'un hydrate d'alumine. Après calcination on obtient la poudre d'alumine servant à la fabrication des céramiques.

### I.3.1. Propriétés structurales et chimiques

Les alumines existent sous sept formes cristallographiques différentes (polymorphes) dont six d'entre elles sont des formes métastables, appelées aussi alumines de transitions :  $\text{Al}_2\text{O}_3$ - $\theta$ , - $\chi$ , - $\eta$ , - $\kappa$ , - $\delta$ , - $\gamma$ . Elles sont toutes instables thermiquement. Au-delà d'environ 1000°C, elles se transforment, par une réaction exothermique irréversible, en alumine  $\alpha$  [LEV 98]. Ce dernier appelé aussi corindon, est la seule forme stable de l'oxyde d'aluminium  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .

L'alumine- $\alpha$  ou corindon de symétrie trigonale appartenant au groupe d'espace  $R\bar{3}c$  possède une structure rhomboédrique avec dix atomes par maille élémentaire. Cependant, pour la commodité des calculs ou des dessins, la structure de l'alumine- $\alpha$  est souvent considérée comme étant un empilement compact hexagonal des anions d'oxygène  $\text{O}^{2-}$  avec les cations  $\text{Al}^{+3}$  occupant les deux tiers des interstices (figure I.5). Ce modèle simplifié, décrit la nature générale de l'arrangement des ions mais pas la structure cristalline réelle de l'alumine, car il ne reflète pas la véritable symétrie trigonale du cristal.

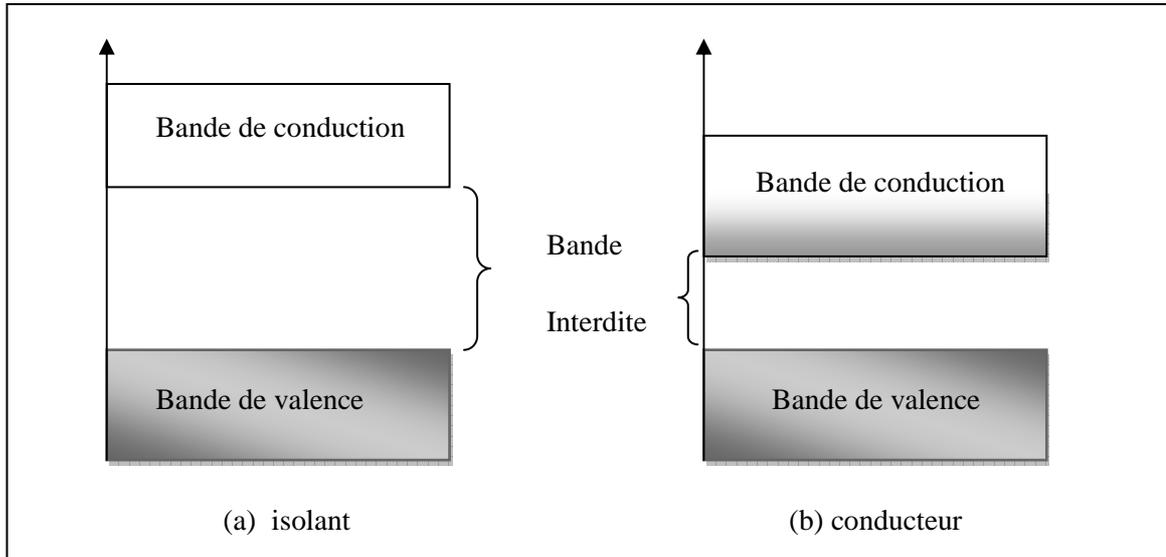


**Figure I.5** : Projection de la structure hexagonale sur le plan de base de la structure. Les petits cercles noirs représentent les cations, les grands cercles et petits cercles sans couleurs représentent respectivement les anions et les sites octaédriques vacants [LEV 98].

L'alumine se distingue par des liaisons hybrides ioniques et covalentes. Sa grande aptitude à résister aux dégradations dues aux agents extérieurs s'explique par la force et la stabilité de ces deux types de liaisons. A température ambiante, elle est inattaquée par les composés chimiques courants, elle fond à plus de 2000°C. Par ailleurs, l'inertie chimique des céramiques est due à leur état énergétique défavorable aux combinaisons chimiques. En particulier, l'inexistence de la réactivité de l'alumine vis-à-vis de l'air.

### I.3.2. Propriétés électriques

Les propriétés de conduction électrique des matériaux tels que les céramiques peuvent être expliquées par leur structure électronique décrite par la théorie des bandes. La bande d'énergie associée aux électrons dans leur état fondamental est appelée bande de valence. Dans cette bande les électrons fortement liés, ne bougent pas. La bande correspondant aux électrons excités est appelée bande de conduction. Ces électrons se déplacent librement dans le matériau. La différence d'énergie entre la bande de valence et la bande de conduction est appelée bande interdite. Selon le nombre d'électrons participant à la conduction pour chaque atome, on se trouve confronté à deux types de matériaux selon le schéma illustré sur la figure I.6 (à 0K) [BRO 92] :



**Figure I.6 :** Schéma des bandes d'énergie électronique (a) pour un isolant et (b) pour un conducteur.

Dans le cas correspondant aux matériaux isolants (a), la bande de valence est complètement remplie alors que la bande d'énergie supérieure (bande de conduction) est complètement vide d'électrons. Les deux bandes étant séparées par une large bande interdite, les électrons ne pourront pas se déplacer sous l'effet d'un champ électrique.

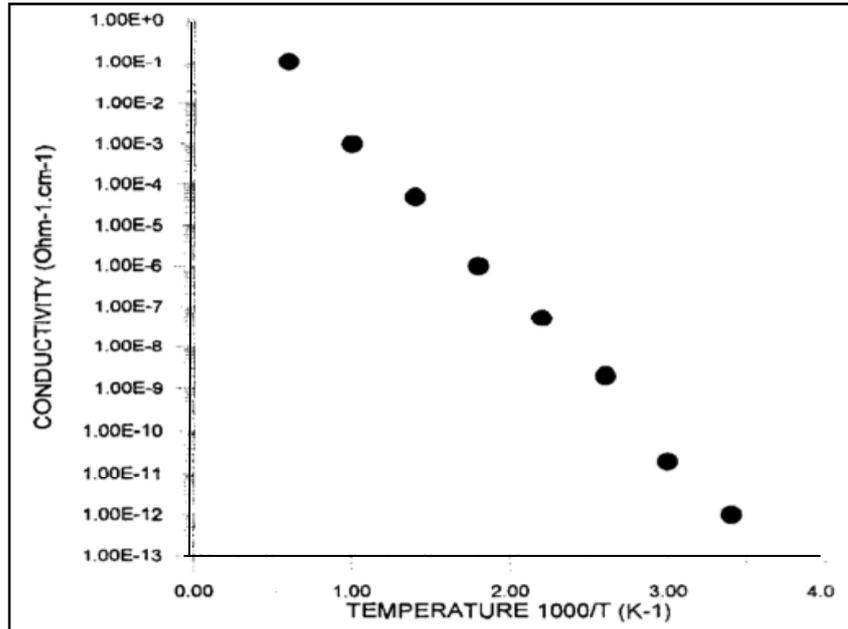
Dans le cas (b) correspondant aux matériaux conducteurs, la dernière bande d'énergie n'est pas complètement remplie. Les électrons peuvent alors accéder aux niveaux d'énergie supérieure sous l'action d'un champ électrique.

Signalons que les semi-conducteurs sont des isolants dont la bande interdite est suffisamment faible ( $\leq 3$  eV) pour que l'agitation thermique permette à des électrons de la franchir et d'atteindre les niveaux d'énergie supérieure inoccupée.

L'alumine présente la structure de bande d'un matériau isolant et son énergie de gap (largeur de la bande interdite) est égale à 9,6 eV [STR 73]. La présence de défauts en son sein se traduit simplement par l'apparition de niveaux localisés dans sa bande interdite.

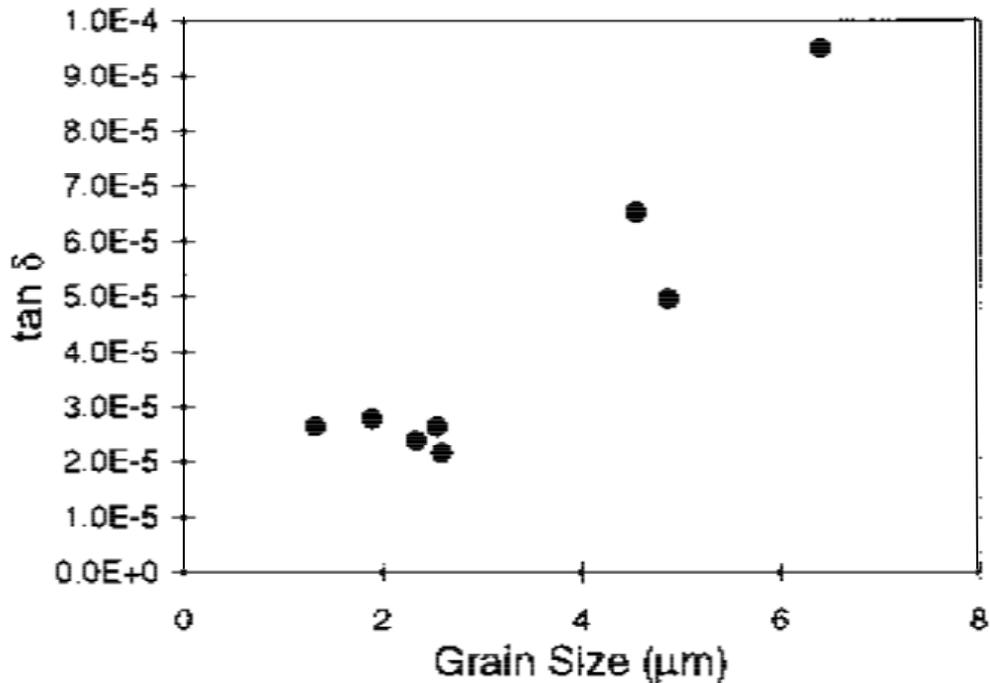
L'alumine polycristalline présente une conductivité électrique qui augmente avec la température, le taux d'impuretés [VIL 04] et de défauts de structure (pores, joints de grain, fissure,...).

La figure I.7 montre l'évolution de la conductivité électrique en fonction de la température dans l'alumine d'épaisseur de 0,5mm, on peut observer que la conductivité électrique varie entre  $10^{-12}$  et  $10^{-1}$   $\text{Ohm}^{-1}\text{cm}^{-1}$  pour des températures allant de 300 à 2300 K.



**Figure I.7 :** Variation de la conductivité électrique de l'alumine en fonction de la température [AVR 98].

Par ailleurs, des études de l'influence de la microstructure sur certaines caractéristiques électriques de l'alumine montrent que la porosité et la taille de grain affectent plus les pertes diélectriques que la constante diélectrique. La figure 1.8 présente l'évolution du coefficient de perte en fonction de la taille des grains. Elle montre que les pertes diélectriques augmentent avec la taille des grains.



**Figure I.8 :** Evolution des pertes diélectriques selon la taille des grains de l'alumine [PEN 97].

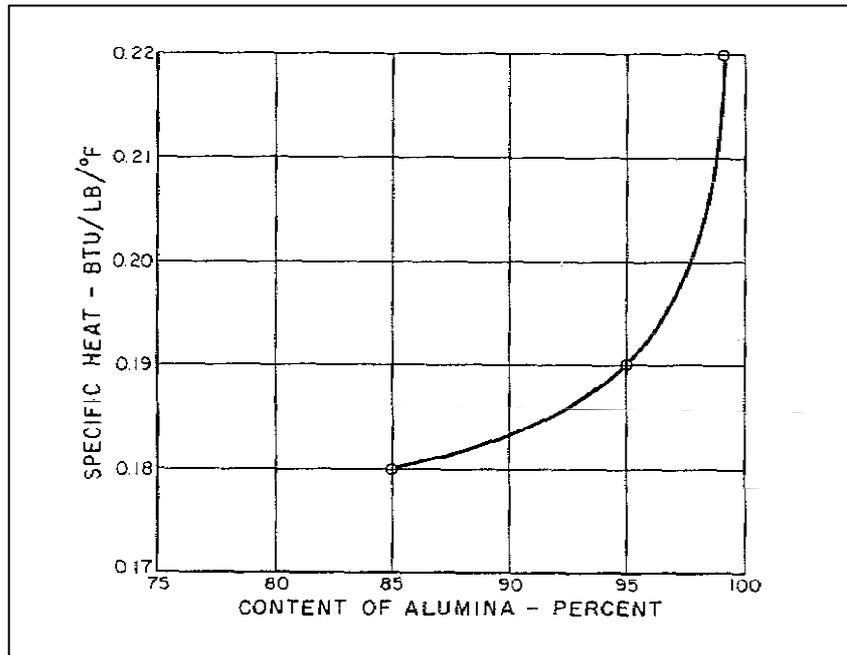
### I.3.3. Propriétés thermiques

Le facteur limitant l'utilisation des céramiques pour des applications en isolation électrique est la chaleur générée durant son fonctionnement. Son accumulation dans le matériau conduit à l'augmentation des pertes diélectriques et éventuellement à une destruction. Si la conductivité thermique est élevée, la concentration locale de la chaleur se trouve retardée. L'échauffement peut induire une dilatation thermique qui génère des contraintes et des tensions. Ces dernières dépassant la résistance mécanique de la céramique, conduisent à la destruction du matériau.

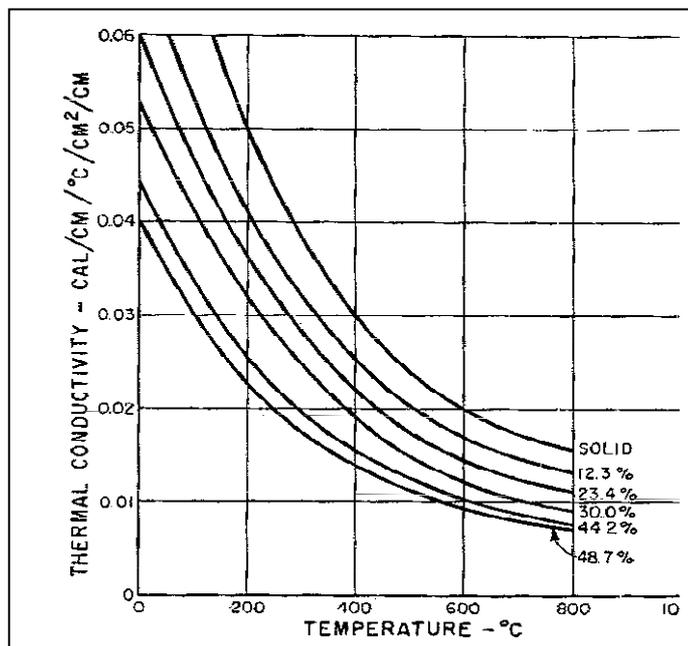
Comparé aux isolants organiques, les céramiques sont caractérisées par leur capacité à résister à haute température. Les principales caractéristiques thermiques des céramiques qui contrôlent l'effet destructeur de l'échauffement, tels que la conductivité thermique, la chaleur spécifique et le coefficient de dilatation thermique, se trouvent affecté par la température mais également par la microstructure comme la pureté et la porosité.

Les figures I.9.a et I.9.b illustrent l'évolution de la chaleur spécifique et de la conductivité thermique de l'alumine en fonction de la température et de la microstructure respectivement. Dans la première, on observe l'augmentation de la chaleur spécifique de

l'alumine avec la teneur en alumine et dans la deuxième, la détérioration de la conductivité thermique avec la porosité.



**Figure I.9.a** : Evolution de la chaleur spécifique en fonction de la teneur en alumine [CLA 62].



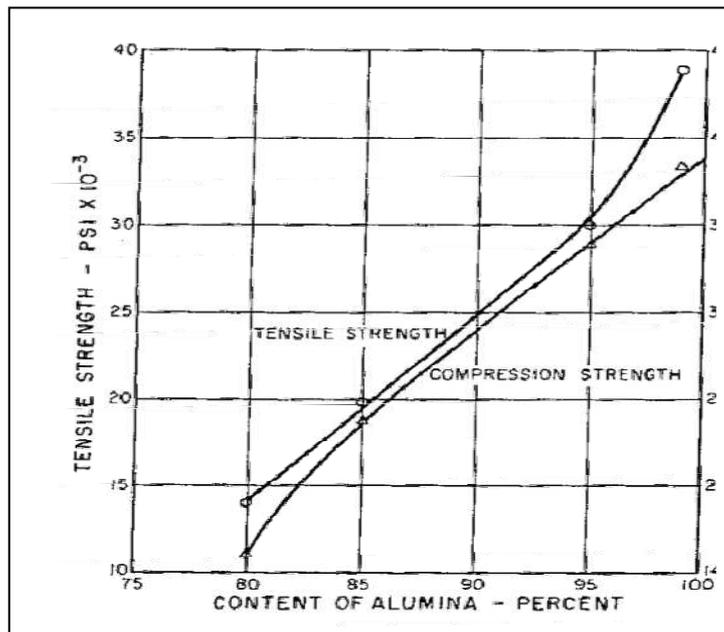
**Figure I.9.b** : Effet de la porosité sur l'évolution de la conductivité thermique de l'alumine en fonction de la température [CLA 62].

### I.3.4. Propriétés mécaniques

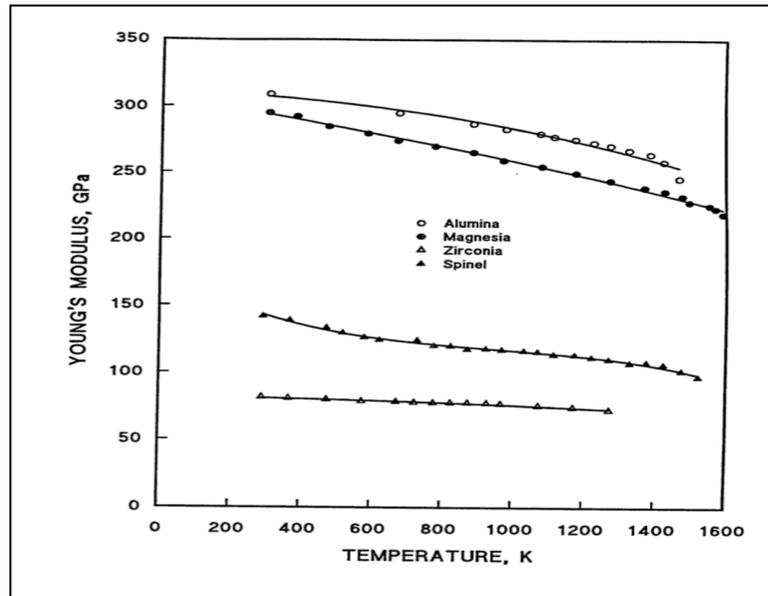
Pour des applications diélectriques des céramiques, les propriétés mécaniques sont aussi importantes que les caractéristiques isolantes des céramiques. La rupture diélectrique survient à cause de l'incapacité du matériau à maintenir l'intégrité de sa structure en présence d'un échauffement local causé par le passage d'un courant ou d'un choc mécanique produit par une montée rapide en haute tension.

La figure I.10.a représente l'effet de la teneur en alumine sur la résistance à la traction et la résistance à la compression. D'après cette figure, plus la teneur en alumine est élevée, plus la résistance à la compression et à la traction sont importantes.

La figure I.10.b montre la caractéristique élastique de l'alumine : le module de Young diminue avec la température. Notons qu'à température ambiante, le module de Young et le module de cisaillement sont de l'ordre de 400 GPa et de 160 GPa respectivement pour l'alumine polycristalline.



**Figure I.10.a** : Effet de la teneur en alumine sur la résistance à la traction et la résistance à la compression [CLA 62].



**Figure I.10.b** : Evolution du module de Young de l'alumine en fonction de la température [SIM 94].

### I.3.4. Défauts dans l'alumine

Les défauts ponctuels et les défauts surfaciques sont les défauts les plus courants qui affectent les propriétés physiques de l'alumine [TOU 05, SAL 05]. Les défauts ponctuels intrinsèques sont des lacunes d'oxygène, des lacunes d'aluminium et des ions aluminium en position interstitielle. Comme dans les solides ioniques, on distingue dans l'alumine les défauts de Schottky et les défauts Frenkel. Les premiers correspondent à la présence simultanée des lacunes d'aluminium et d'oxygène et pour que l'électroneutralité soit vérifiée : trois lacunes d'oxygène se créent pour deux lacunes d'aluminium. Quant aux défauts de Frenkel, ils correspondent à la présence simultanée de lacune d'aluminium et un ion d'aluminium en position interstitielle.

Les défauts ponctuels extrinsèques se résument à des impuretés. Un grand nombre d'espèces étrangères sont présentes dans l'alumine. Afin de contrôler ou améliorer les propriétés physiques des céramiques, des impuretés telles que  $Zr^{4+}$ ,  $Mn^{3+}$  ou  $Mn^{2+}$  et  $Ti^{3+}$  ou  $Ti^{4+}$  sont parfois introduites sous forme d'oxyde  $ZrO_2$ ,  $MnO_2$  et  $TiO_2$  dans le matériau volontairement (dopage) [SAL 03]. Ces éléments se substituent aux cations  $Al^{3+}$  dans le réseau.

Les défauts surfaciques sont essentiellement constitués de nombreuses interfaces que le matériau renferme. Elles sont principalement localisées aux joints de grains, entre les phases intergranulaires (verre, spinelle  $MgAl_2O_4$ , anorthite  $CaAl_2Si_2O_8$ ,...) et les grains d'alumine.

Ces différents défauts cités se manifestent par l'apparition d'états localisés dans la bande interdite et qui peuvent constitués des pièges aux porteurs de charge (trous, électrons). Selon leurs énergies, on distingue les pièges peu profonds  $< 0.1$  eV qui correspondent aux défauts étendus (joints de grains) et les pièges profonds de l'ordre de 4 eV et qui correspondent aux lacunes.

#### **I.4. Conclusion**

L'alumine est utilisée dans divers domaines pour des applications haute tension en électronique de puissance en raison de sa bonne tenue électrique, conductivité thermique et résistance mécanique. Son choix comme substrat pour assurer l'isolation électrique dans les modules de puissance résulte d'un bon compromis entre ses propriétés diélectriques et son coût économique.

Le bon fonctionnement des modules dépend fortement de la fiabilité des matériaux intégrés dans le module, notamment du substrat isolant. Cependant, dans un environnement haute tension, le substrat d'alumine est assujéti à divers contraintes principalement de nature électrique pouvant conduire à une rupture diélectrique. L'avènement de nouvelles technologies telles que les puces semi-conductrices à SiC qui peut permettre des performances en terme de tenue en tension encore meilleurs pourrait conduire à l'apparition de contraintes encore plus intenses au niveau de l'isolation dans un module de puissance. Une étude préalable de la structure et des différentes caractéristiques physiques du matériau servant à l'isolation électrique s'avère donc nécessaire. Les caractéristiques électriques, thermiques et mécaniques de l'alumine font de lui un bon candidat pour des applications dans un environnement haute tension. En plus de ces propriétés isolantes, sa conductivité thermique élevée lui permet d'évacuer la chaleur facilement, son coefficient de dilatation thermique voisin des coefficients de dilatation thermique des matériaux environnants, permet de minimiser les contraintes engendrées sous l'effet de l'échauffement et enfin, sa résistance mécanique élevée le rend apte à faire face aux contraintes mécaniques générées par l'environnement haute tension.

# **Chapitre II: Etude de la conduction électrique dans l'alumine**

L'une des caractérisations électriques des isolants solides les plus étudiées est la mesure du courant de conduction et son évolution en fonction du champ électrique appliqué. En effet, l'apparition et l'évolution du courant de conduction sont souvent assimilées à un signe avant-coureur d'une dégradation des propriétés diélectriques du matériau. Son étude est donc essentielle pour une caractérisation électrique du substrat isolant utilisé dans les composants de puissance dans le but d'interpréter les divers phénomènes intervenant juste avant la dégradation du matériau.

Ce chapitre est consacré à l'étude expérimentale du courant de conduction de l'alumine sous forts champs électriques et son évolution en fonction du champ électrique appliqué, la température et la nature des électrodes. Les échantillons considérés sont des alumines de différentes puretés (96 et 99,5 %) d'épaisseurs 635 $\mu$ m. Les résultats obtenus sont ensuite confrontés aux modèles de conduction électrique existants et interprétés.

## **II.1. Courants transitoires et courants de conduction sous polarisation continue**

### **II.1.1. Définition**

Lorsqu'un matériau isolant est soumis à une tension constante, on observe d'abord l'apparition d'un courant transitoire prédominant qui peut être initialement intense, mais s'atténue avec le temps selon la loi empirique de Curie-Von Schweider [FOU 01] :

$$I(t) = At^{-n} \quad \text{II. 1}$$

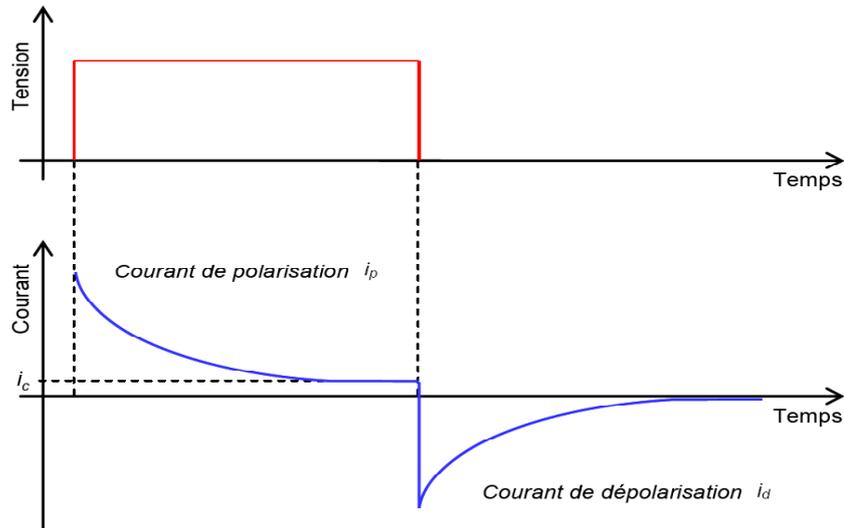
où A et n sont des constantes, A dépend du matériau et de la température et n caractérise la décroissance du courant appelé aussi courant d'absorption  $I_A$ .

Par la suite, il apparaît un régime permanent aux temps relativement longs et qui correspond à l'établissement d'un courant de conduction  $I_c$  dont le mécanisme peut être décrit par l'un des modèles de conduction existants.

Le courant total résultant est appelé courant de polarisation  $I_p$  et le courant d'absorption s'exprime alors par :

$$I_A = I_p - I_c \quad \text{II. 2}$$

Lorsqu'on supprime la contrainte électrique, le courant de conduction devient nulle, mais il apparaît un courant de polarité opposé au courant d'absorption, appelé courant de dépolarisation, qui décroît jusqu'à s'annuler.



**Figure II.1** : Allure de la courbe du courant pendant la polarisation et la dépolarisation [SEG 00].

## II.1.2. Mécanismes de conduction d'origine électronique

### II.1.2.1. Mécanismes de conduction régis par l'interface métal-isolant

- **L'effet Schottky**

L'effet Schottky est un phénomène caractérisé par l'émission d'électrons de l'électrode négative dans un diélectrique. L'injection Schottky correspond à une activation thermique d'électrons à travers l'interface métal-isolant, doublée d'un abaissement de la barrière de potentiel entre les deux milieux par l'application d'un champ électrique [LAU 99]. Cet abaissement est donné par  $\Delta\phi = \beta_s \sqrt{E_{cat}}$ . L'expression du courant Schottky est donné par l'équation suivante :

$$J = AT^2 \exp\left(-\frac{\phi_0 - \beta_s \sqrt{E_{cat}}}{kT}\right) \quad \text{II.3}$$

$$\text{et } \beta_s = \frac{q^{3/2}}{\sqrt{4\pi\epsilon_0\epsilon_r}}$$

où  $A$  est la constante de Richardson-Dushman,  $\beta_s$  la constante de Schottky,  $k$  la constante de Boltzman,  $T$  la température,  $E_{cat}$  le champ électrique à la cathode et  $\phi_0$  le travail de sortie du métal dans le vide. Ce mécanisme d'injection est en partie à l'origine de l'accumulation de charges aux interfaces métal-isolant et crée la distorsion du champ électrique dans l'isolant (Figure II.2).

- **Effet Fowler-Nordheim**

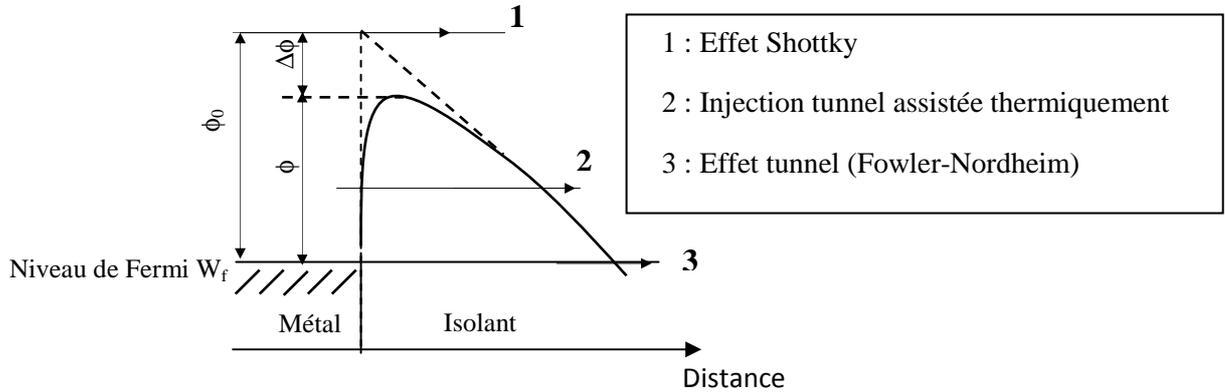
Dans ce cas les électrons peuvent passer dans l'échantillon par effet tunnel [LAU 99] (Figure II.2). La loi d'émission est alors indépendante de la température, ce qui la différencie de l'injection Schottky.

$$J = A.E^2 \exp\left(-\frac{\beta_{FN}}{E}\right) \quad \text{II.4}$$

$$A = \frac{2,2 \cdot q^3}{8\pi \cdot h \cdot \phi} \quad \text{et} \quad \beta_{FN} = \frac{8\pi \sqrt{2m\phi^3}}{2,96 \cdot h \cdot q}$$

$m$  est la masse d'un électron,  $h$  la constante de Planck et  $E$  le champ appliqué. On constate que la température n'intervient pas dans la formule II.4 et que c'est essentiellement le facteur exponentiel, fortement dépendant de  $E$ , qui détermine la variation de  $J$ . Cet effet n'intervient qu'aux champs élevés, il se produit surtout quand l'épaisseur de l'isolant est assez faible, de l'ordre de 50 Å.

Un autre processus mixte, effet tunnel assisté thermiquement est possible. Dans ce processus l'électron est activé thermiquement au dessous du sommet de la barrière métal/isolant (figure II.2).



**Figure II.2 :** Configuration des bandes d'énergie à l'interface Métal-Isolant en présence du champ électrique [SEG 00].

**II.1.2. 2. Mécanismes de transport contrôlés par le volume**

- **Mécanisme de Poole-Frenkel**

Il s'agit d'un mécanisme semblable à l'émission Schottky, à la différence que l'activation thermique s'applique à des électrons piégés dans le volume de l'isolant. En effet, il existe dans ces matériaux un certain nombre de sites capables de piéger des porteurs de charges, physiquement cela correspond à des défauts où des imperfections dans le matériau. Lorsque les porteurs de charges se trouvent ainsi capturés, ils peuvent être réémis dans la bande de conduction ou dans un piège voisin [SEG 00]. Pour cela, ils doivent vaincre un potentiel coulombien qui les rappelle vers le site d'origine.

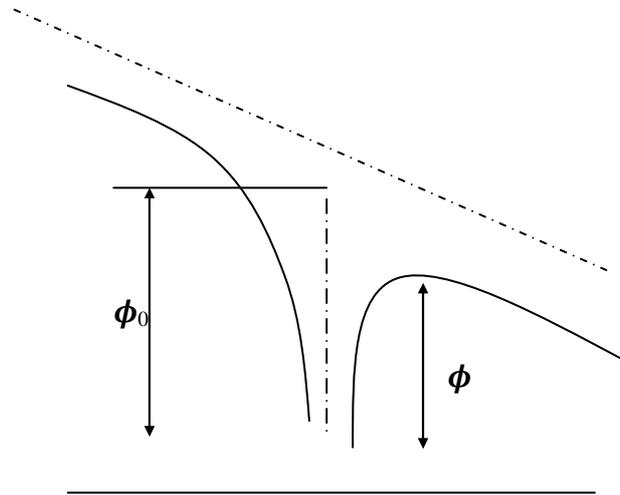
Si un champ électrique est appliqué à l'isolant, le potentiel coulombien dans le sens du champ est réduit, ce qui se traduit par un abaissement de la barrière de potentiel que doivent franchir les porteurs de charge d'une quantité :

$$\Delta\phi = \phi_0 - \phi = \beta_{PF}\sqrt{E}$$

La densité de courant en fonction du champ électrique appliqué peut alors s'exprimer par :

$$J = J_0 \exp\left(-\frac{\phi_0 - \beta_{PF} \cdot E^{1/2}}{kT}\right) \tag{II.5}$$

$\beta_{PF} = \sqrt{\frac{q^3}{\pi\epsilon_0\epsilon_r}}$  est la constante de Poole-Frenkel. Sachant que  $\beta_{PF} = 2.\beta_{Schottky}$



**Figure II.3** : Diagramme de bande dans le cas de l'effet Poole-Frenkel [SEG 00].

- **Conduction par sauts (Hopping)**

Le mécanisme de transport par "hopping" diffère des processus conventionnels de conduction car il se produit entre des états électroniques localisés en énergie dans les queues de bande des matériaux amorphes. Ce processus ne peut être mis en évidence que lorsque le nombre de porteurs situés dans la bande de conduction ou susceptibles d'y être amenés est très faible [ZEB 97].

D'une manière générale, la probabilité de saut entre un site donneur et un site accepteur est proportionnelle à l'intégrale de recouvrement entre ces deux sites, et au facteur de Boltzmann relatif à la différence d'énergie correspondante. L'intégrale de recouvrement ne dépend que de la distance "a" entre deux sites, elle est de la forme :  $I = I_0 \exp(-2\alpha a)$  où  $\alpha$  caractérise l'amortissement des fonctions d'onde associées aux porteurs. Le facteur de Boltzmann s'écrit  $\exp(-\frac{w}{kT})$ , où w désigne la différence d'énergie entre les deux sites ainsi, la probabilité de transition entre deux sites s'exprime par :

$$P = P_0 \exp\left[-\left(2\alpha a + \frac{w}{kT}\right)\right] \quad \text{II.6}$$

- **Courant limité par charge d'espace**

Lorsque la concentration de charges injectées dans le diélectrique est très inférieure à la concentration de charges intrinsèques de telle sorte qu'elle ne produit pas une distorsion du champ électrique local, la densité de courant résultant des mouvements des charges dans le matériau, de mobilité  $\mu$  est régie par la loi d'Ohm :

$$J = n_0 \mu E \quad \text{II.7}$$

avec  $n_0$  est la densité de charge intrinsèque et  $E$  le champ électrique appliqué.

Au fur et à mesure que la densité de charge injectée augmente sous l'effet d'une tension appliquée croissante, un changement de comportement s'opère [COE 93]. La résolution du système d'équation constitué de l'équation de Poisson, l'équation de continuité conduit à une densité de courant limitée par charge d'espace de la forme :

$$J = \frac{9}{8} \frac{\epsilon \mu V^2}{L^3} \quad \text{II.8}$$

où  $\epsilon$ ,  $V$  et  $L$  sont respectivement la constante diélectrique du matériau, la tension à ses bornes et son épaisseur.

Pour un diélectrique idéal sans piège, la densité de courant de conduction est alors fonction de la densité de charges à l'intérieur du matériau et peut s'exprimer sous cette forme :

$$J = n_0 \mu \frac{V}{L} + \frac{9}{8} \frac{\mu \epsilon V^2}{L^3} \quad \text{II.9}$$

Si la densité de charge injectée est plus grande que celle présente dans le diélectrique, le courant de conduction se limite uniquement au courant limité par la charge d'espace. Dans le cas d'un diélectrique réel, présentant des imperfections, une partie des charges se trouvent piégés [COE 93, SEG 78]. En considérant que l'énergie des pièges est concentrée sur un seul niveau, le courant de conduction peut s'écrire :

$$J = \theta \frac{9}{8} \frac{\mu \epsilon V^2}{L^3} \quad \text{II.10}$$

Avec  $\theta = \frac{n_c}{n_t} = \frac{N_c}{N_t} \exp\left(-\frac{\phi_t}{kT}\right)$  représente la fraction de charge libre par rapport aux charges capturées par des pièges de niveau énergétique  $\phi_t$  (avec  $N_t$  est la densité d'état des pièges).

Dans le cas où l'on considère que les pièges sont situés à des niveaux énergétiques différents, on parle d'une distribution en énergies de piège. La loi II.8 prend alors la forme :

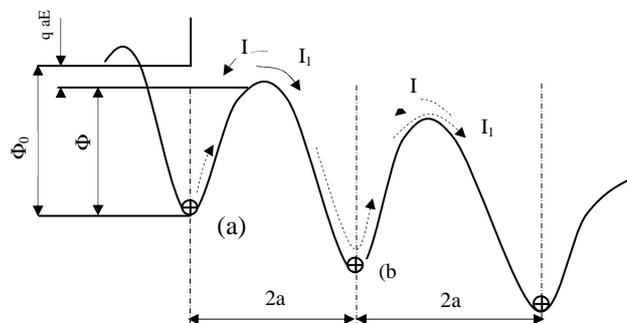
$$J = \frac{9}{2} \varepsilon \mu V^{l+1} / L^{2l+1} \quad \text{II.11}$$

La représentation dans un diagramme bi-logarithmique de la caractéristique [SEG 00] Log J-Log E est une droite dont la pente nous renseigne sur la distribution énergétique des pièges. Pour une pente égale à 2, les pièges sont concentrés sur un seul niveau énergétique et pour une pente supérieure à 2 (entre 2 et 4), les pièges sont situés à des niveaux énergétiques différents.

### II. 1.3. Mécanisme de conduction d'origine ionique

Un électron se comporte comme une charge ponctuelle de masse négligeable. Un ion présente une masse bien plus importante que celle d'un électron, donc il y a une différence sensible entre le comportement d'un ion et celui d'un porteur léger (électron ou trou).

Les modèles de transport purement quantiques sont improbables à cause de la masse des ions. Par contre, les autres mécanismes : Poole, Poole-Frenkel, charge d'espace peuvent parfaitement intervenir dans le cas des porteurs ioniques. Un modèle a été développé [SEG 78] où on considère un ion se déplaçant sous l'effet du champ dans un système de puits de potentiel d'égale profondeur  $\phi_0$  et répartis uniformément (figure II.4). La probabilité de saut dans ce cas est de la forme :  $\exp(-\phi/KT)$  où  $\phi$  représente la hauteur énergétique à franchir et vaut :  $\phi_0 - qEa$  où  $a$  est la demi distance entre deux sites.



**Figure II.4** : Schéma du parcours d'un ion dans une série de puits de potentiel [SEG 78].

La densité de courant résultant est la somme algébrique des courants direct et inverse et peut s'exprimer alors par :

$$J = J_0 sh(qaE/kT) \quad \text{II.12.a}$$

Dans le cas des champs forts de l'ordre de  $10^7$  V/mm, le courant s'écrit :

$$J = J_0 exp[(\phi_0 - qaE)/kT] \quad \text{II.12.b}$$

## II.2. Etude expérimentale du courant de conduction

### II.2.1. Matériau

Dans notre étude, les mesures de conduction ont été réalisées sur deux types d'échantillons d'alumine d'épaisseur 635 $\mu$ m, l'un de pureté 96% et l'autre 99,5%. Afin d'assurer un bon contact (métal/isolant), sur chacune des deux surfaces de chaque échantillon est déposée une fine couche de métallisation en aluminium d'épaisseur 20 nm et de diamètre de 20 mm par la méthode d'évaporation sous vide. Les mesures ont été effectuées à haute tension jusqu'à 25 kV pour une gamme de température allant de 293°K et 403°K.

Les principales caractéristiques des échantillons d'Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> utilisées pour nos mesures sont regroupées sur le tableau II.1.

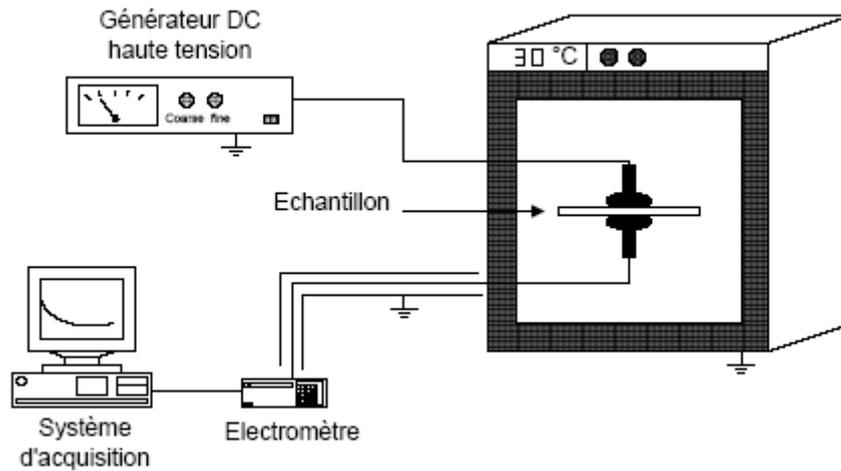
**Tableau II.1** : Les différentes caractéristiques des alumines étudiées [COO 08].

Teneur en alumine	96%	99,5%
L'épaisseur ( $\mu\text{m}$ )	635	635
Densité ( $\text{g cm}^{-3}$ )	3,72	3,90
Conductivité thermique ( $\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ )	24,7	30
Le module de Young (GPa)	303	370
Permittivité relative (1MHz)	9	9,6
Pertes diélectriques	0,0002	0,0001

### II.2.2. Dispositif expérimental

Les mesures de courants de conduction ont été effectuées à l'aide d'un dispositif expérimental classique composé d'un générateur haute tension qui peut fournir une tension continue jusqu'à 30 kV, un porte-échantillon en téflon, d'une enceinte dont la température peut être réglée et d'un électromètre (keithley) possédant une résolution de  $10^{-14}$  A. Ce dernier est piloté par un microordinateur qui permet d'enregistrer toutes les valeurs obtenues et tracer les courbes correspondantes. Le porte-échantillon qui amène la haute tension à l'échantillon est équipé d'électrodes en acier inoxydable de profil Rogowski et de diamètre de 18mm. Vu les niveaux des courants mesurés, un blindage des câbles et l'utilisation de la cage de Faraday s'avèrent donc nécessaires pour éviter les courants parasites. Le niveau de bruit en courant de ce dispositif est estimé à moins de  $10^{-12}$  A.

L'utilisation d'anneau de garde dont le rôle est de rejeter la mesure des courants de surface n'est pas indispensable dans nos mesures car leur contribution aux courants résultant est négligeable. En effet l'estimation de ces courants de surface montre que pour des tensions appliquées de 25 kV (à 293 K) et de 12 kV (à 403 K) ces courants de surfaces sont de l'ordre 0.2 kV/mm et 0.1 kV/mm respectivement.



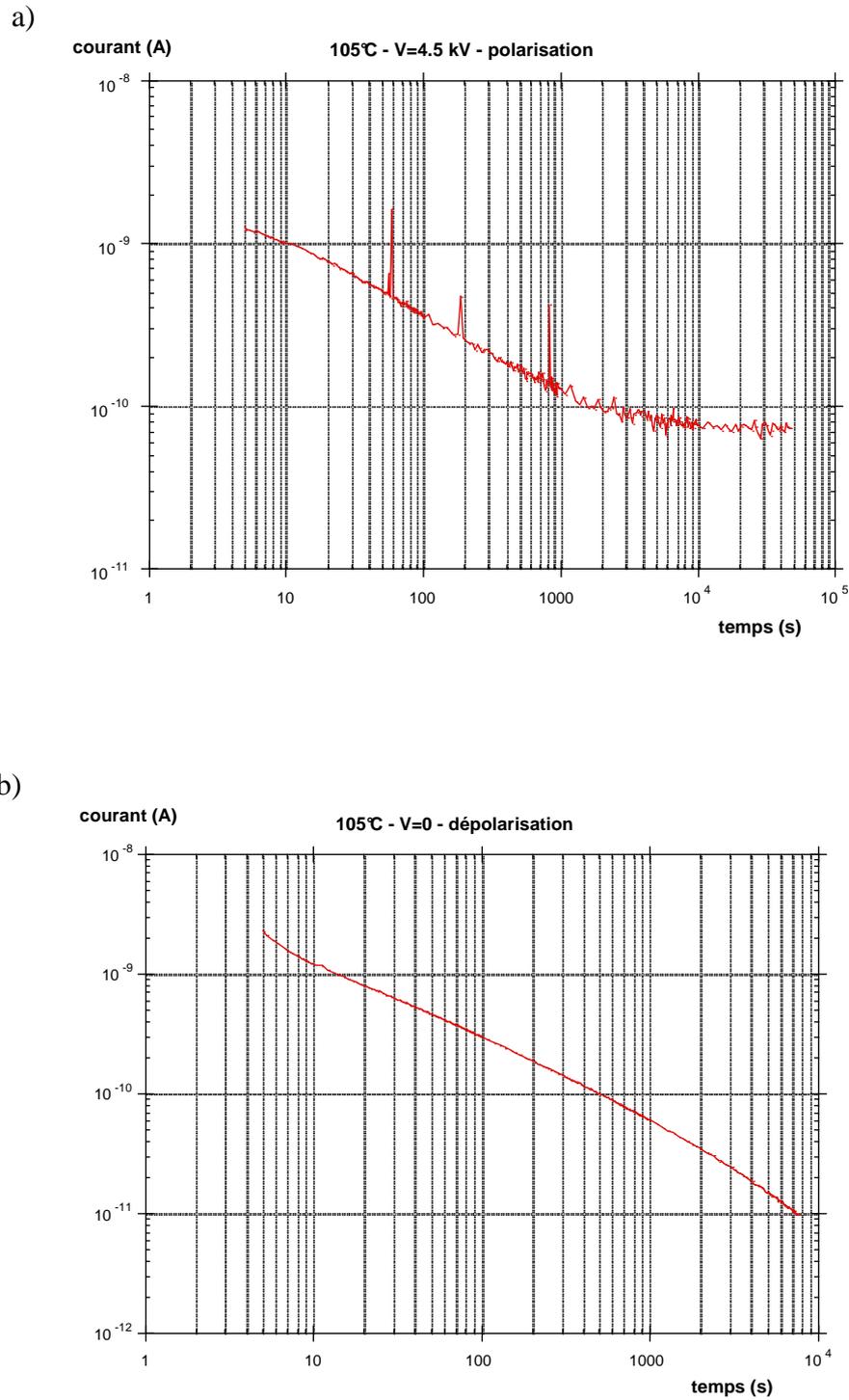
**Figure II.5 :** Dispositif de mesure de courant de conduction.

### II.2.3. Evolutions du courant de polarisation et de dépolarisation en fonction du temps

L'évolution du courant de polarisation en fonction du temps a été mesurée pour des champs électriques appliqués allant jusqu'à 40 kV/mm pour des températures allant de la température ambiante jusqu'à 403 °K. Des exemples de profil du courant de polarisation et de dépolarisation sont représentés sur les figures II.6.a et II.6.b respectivement.

Comme l'illustre la figure II.6.a, l'ensemble des mesures des courants de polarisation, effectuées sur l'alumine, pour les différentes tensions à différentes températures, montrent une décroissance lente jusqu'à atteindre une valeur stable au bout de  $10^4$  s. Cette décroissance lente implique un facteur multiplicatif  $n$ , selon l'équation II.1 décrite précédemment pour les courants transitoires, assez faible ( $<1$ ). Le courant de conduction est alors déterminé à partir des courbes de polarisation et correspond au courant stable qui apparaît au bout de  $t=10^4$  s et qui persiste pour des temps supérieurs.

Entre chaque mesure de courant de polarisation, la contrainte électrique est supprimée ( $v=0$  kV) et les courants de dépolarisation sont enregistrés. De la même manière que la partie transitoire du courant de polarisation, le courant de dépolarisation décroît jusqu'à s'approcher des très faibles valeurs du courant. La dépolarisation est maintenue pendant une durée d'environ  $10^4$ s, temps nécessaire pour dissiper les charges avant la seconde mesure de polarisation.

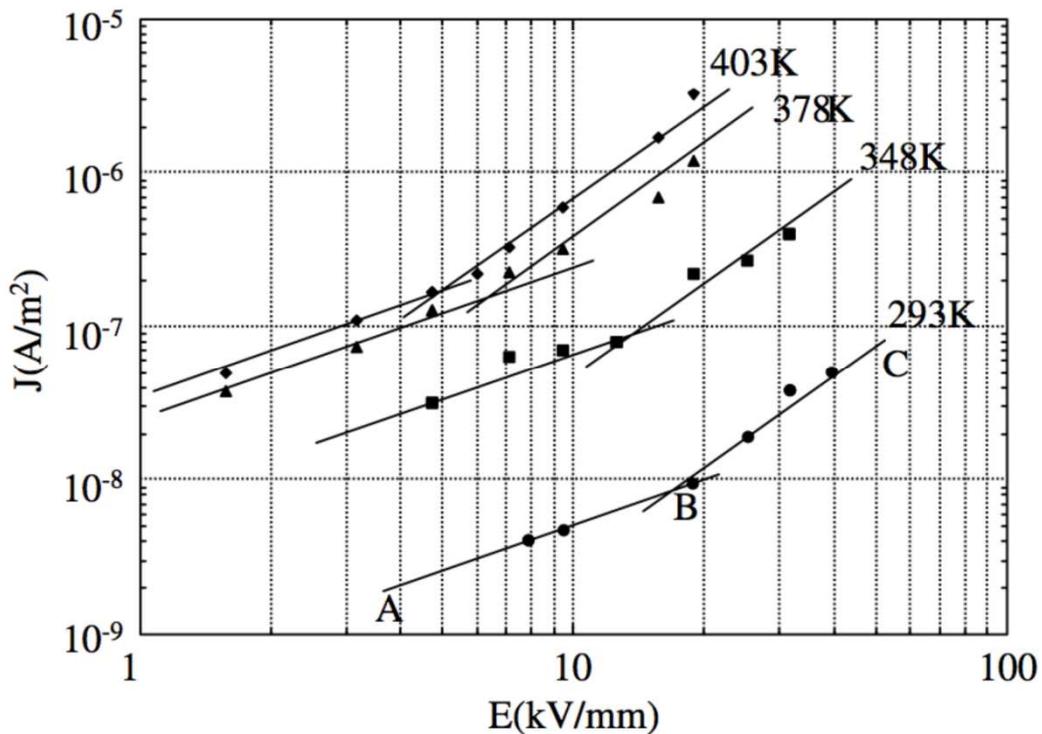


**Figure II.6 :** Courant de polarisation (V=4.5 kV) et de dépolarisation (V=0 kV) de l'alumine 96 % d'épaisseur 635  $\mu\text{m}$  à T=105°C.

### II.2.4. Détermination du courant de conduction

Les valeurs du courant de conduction déterminées sur chaque courbe de polarisation en fonction du champ électrique appliqué et de la température sont portées dans un système d'axe log-log comme le montre la figure II.7. En premier lieu, on observe que la densité du courant augmente avec le champ électrique appliqué et de la température. En effet, nous remarquons qu'à température ambiante (293 K), la densité de courant passe de  $4 \cdot 10^{-9}$  à  $5 \cdot 10^{-8}$  A/m<sup>2</sup> quand le champ électrique appliqué varie de 8 à 40 kV/mm et pour un champ électrique appliqué de 9,5 kV/mm, la densité de courant augmente de  $4 \cdot 10^{-9}$  à  $6 \cdot 10^{-7}$  A/mm<sup>2</sup> quand la température varie de 293 à 403 K.

Notons que pour les températures supérieures à 378 K, le champ électrique maximal appliqué est d'environ 20 kV/mm. Il est délicat de faire des mesures de courants pour des champs électriques supérieures à 20 kV/mm car le risque de dégradation du matériau devient de plus en plus élevé. A température ambiante le champ critique est au-delà de 40kV/mm.



**Figure II.7 :** La caractéristique ( $\log J - \log E$ ) de l'alumine 96 % d'épaisseur 635  $\mu$ m à différentes températures.

#### **II.2.4.1. Courant de conduction sous faibles champs : Comportement ohmique**

La représentation de la densité de courant en fonction du champ électrique, pour différentes températures, sur une échelle bi-logarithmique donne des droites presque parallèles de différentes pentes. Pour les champs relativement faibles la pente de ces droites, pour les différentes températures, est proche de 1. Donc on peut conclure que dans cette région la conduction est régie par un comportement ohmique (équation. II.6) ; ce qui signifie que dans cette région, la densité de charge injectée est inférieure à la densité de charge intrinsèque.

La limite en champ de ce comportement varie en fonction de la température. Plus la température augmente plus cette limite de champ est décalée vers les valeurs inférieures du champ électrique.

#### **II.2.4.2. Courant de conduction sous champs forts : Comportement limité par la charge d'espace**

La représentation donnée par la figure II.7, montre qu'au-delà d'une certaine valeur de champs, les différentes droites  $J(E)$  sur une échelle log-log changent de pente.

La pente de ces droites est, pour les différentes températures étudiées, proche de 2 ; ceci peut être attribué à un mécanisme de conduction limité par la charge d'espace (équations II.8 et II.10).

Cette hypothèse semble être confirmée par l'absence de réversibilité des courants d'absorption et de résorption à partir d'un champ limite (figures II.6). En effet, la réversibilité des courants de polarisation et de dépolarisation n'existe pas pour des courants limités par charge d'espace [SEG 00].

La figure II.7 montre la dépendance du champ électrique de transition de la zone de conduction ohmique à la zone de conduction limitée par la charge d'espace, avec la température. Ce champ de transition diminue avec la température. Le tableau II.2 donne les valeurs de ce champ avec la température.

**Tableau II.2 :** Les valeurs du champ électrique et de la tension de transition avec la température (Alumine 96%, 635  $\mu\text{m}$ ).

Température ( $^{\circ}\text{K}$ )	293	348	378	403
Champ de transition $E_{\text{tr}}$ (kV/mm)	17	13	6,2	5
Tension de transition (kV)	10,79	8,25	3,93	3.17

Comme cela a été rapporté par d'autres auteurs [BLO 97, BRE 01], des valeurs de la pente de la courbe de conduction dans la zone du comportement limité par la charge d'espace significativement supérieur à 2, induit la dépendance de la mobilité des porteurs de charge en champ électrique appliqué. Nos mesures donnent une valeur de pente très voisine de 2, ce qui montre que la mobilité pour une température donnée reste constante (indépendante du champ électrique appliqué). Le tracé du courant de conduction en fonction de l'inverse de la température dans la région ohmique (figure II.8 :  $V = 5$  kV) met en évidence la dépendance de la mobilité en température selon la loi d'Arrhenius ;

$$\mu = \mu_0 \exp\left(-\frac{\phi}{kT}\right) \quad \text{II.13}$$

où  $\phi$  représente l'énergie d'activation.

Comme la mobilité ne dépend pas du champ électrique, elle est donnée par la même relation dans la région régie par une conduction limitée par la charge d'espace ( $V=19$  kV).

Dans la région de conduction ohmique, les charges intrinsèques (majoritairement des électrons) proviennent de l'activation thermique de ces derniers de la bande de valence, la densité de charge intrinsèque peut alors s'écrire sous cette forme :

$$n_0 = N_c \exp\left(-\frac{\phi'}{kT}\right) \quad \text{II.14}$$

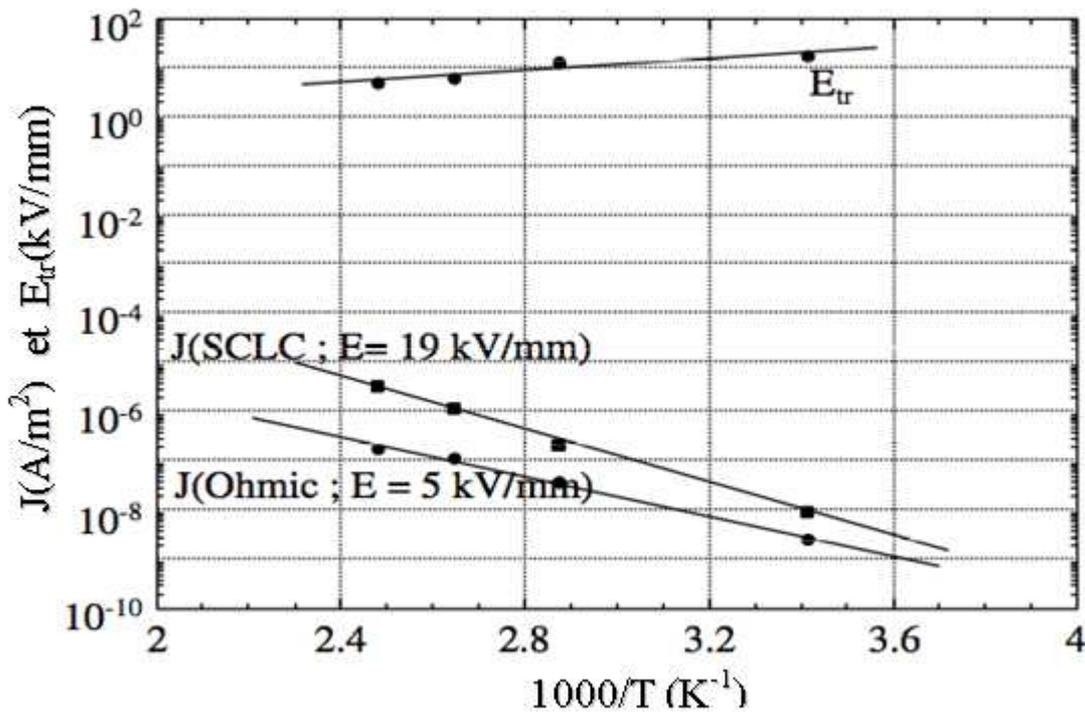
où  $N_c$  est la densité d'état dans la bande de conduction, et  $\phi'$  est la différence d'énergie entre le niveau le plus bas de la bande de conduction et l'énergie de Fermi ( $E_c - E_f$ ).

Par conséquent, des relations (II.7), (II.10), et (II.14) on déduit :

Dans la région ohmique  $J \sim \exp - \left( \frac{\phi' + \phi}{kT} \right)$  II.15.a

Dans la région limitée par la charge d'espace  $J \sim \exp - \left( \frac{\phi_t + \phi}{kT} \right)$  II.15.b

De la figure II.8 on déduit que  $\phi_t + \phi$  présente une valeur faible de 0,23 eV. Cette faible valeur conduit aussi à une valeur du niveau énergétique des pièges  $\phi_t$  de l'alumine encore plus faible en accord avec les résultats de Li and al, déterminés par la mesure des courants thermiquement stimulés et qui estiment que les faibles valeurs de cet ordre de grandeur correspondent à des niveaux de piège discret [LI 06].

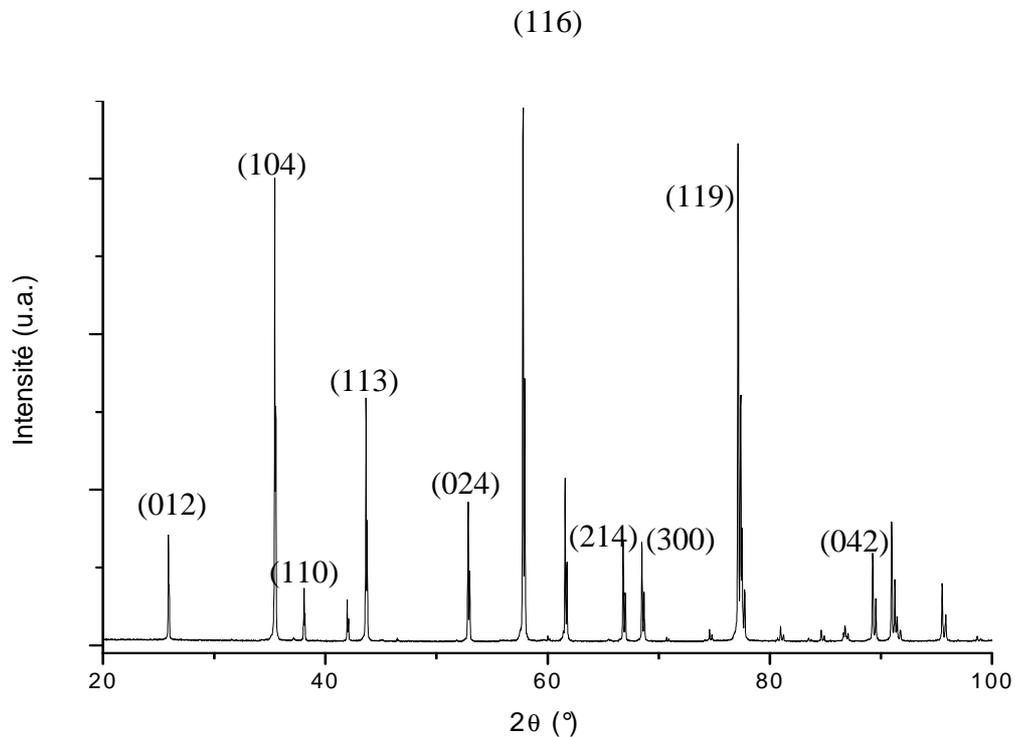


**Figure II.8 :** Le courant de conduction (dans la région ohmique et SCLC) et champ électrique de transition en fonction de l'inverse de la température (alumine 96 % d'épaisseur 635  $\mu$ m).

Les propriétés de conduction d'un isolant tel que l'alumine ne dépendent pas uniquement des charges injectées sous l'effet de l'application d'une tension importante, mais

elles dépendent également de la densité et de la nature des pièges auxquels sont associés les différents défauts (lacune, joints de grains, phases intergranulaires,...) que l'alumine peut contenir [BLA 01,TOU 07] et ce quelque soit le mécanisme de conduction [KOL 00].

Les pièges jouant un rôle important dans le phénomène de conduction sont les pièges peu profonds dont l'énergie est de l'ordre de grandeur  $< 1$  eV. La diffraction par rayon X (figure II.9) des échantillons de l'alumine étudiés dans cette partie met en évidence l'existence d'une seule phase qui est l'alumine  $\alpha$ . Pour ce qui est des autres phases, elles sont pratiquement inexistantes ou d'une quantité très négligeable. En effet, Comme l'intensité théorique du pic le plus intense de la phase spinelle  $MgAl_2O_4$  correspond à l'un des pics de l'alumine  $\alpha$ , on pourrait supposer que ce pic correspond à la présence de trace de la phase spinelle dans l'alumine. On déduit alors que ces pièges peu profonds correspondent majoritairement à des joints de grains d'alumine et éventuellement à l'interface intergranulaire entre les grains d'alumine et la phase spinelle. Quant aux pièges profonds tels que les défauts de Schottky ( $\sim 5.17$  eV) et défauts de Frenkel ( $\sim 4-6$  eV) [LAG 98], ils ont peu d'influence sur le phénomène de conduction en raison de leur faible quantité comparé à celle des pièges peu profonds.



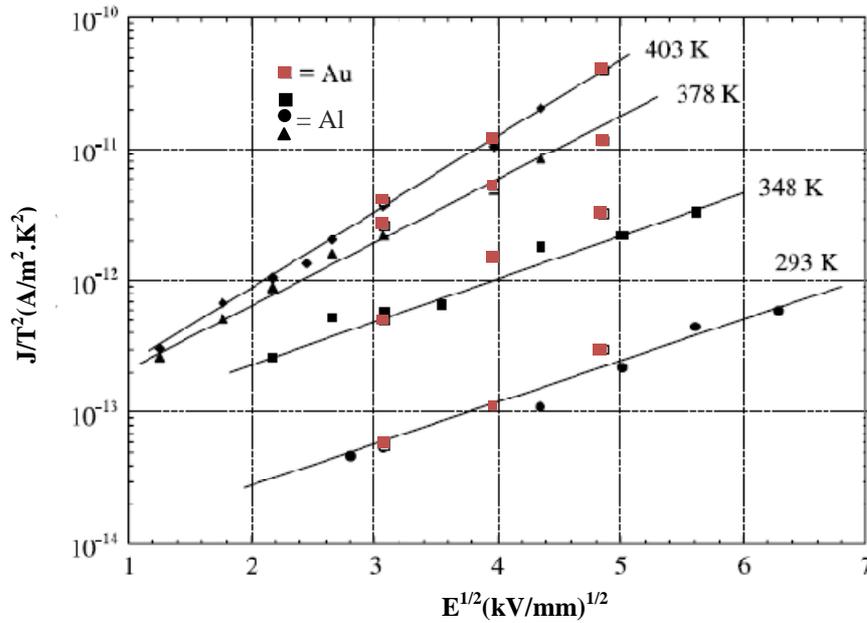
**Figure II.9** : Le spectre de la diffraction x de l'alumine 96%. Il montre la présence d'une phase ( $\alpha$ - $Al_2O_3$ ).

L'évolution du courant de conduction en fonction des interfaces grains d'alumine/grains d'alumine (la microstructure) peut être interprétée comme suit : plus l'interface entre les grains d'alumine est importante, plus la densité des pièges est importante autrement dit plus le nombre de porteurs de charges piégées est important. Par conséquent, la densité du courant devient moins importante du fait que les porteurs de charge piégés sont immobilisés et ne participent donc pas à la conduction électrique.

Par ailleurs, la température élevée conduit à la diminution de la barrière des niveaux des pièges. Ceci favorise le dépiégeage des porteurs de charges, sous l'effet combiné de la tension appliquée et de la température. Ces porteurs de charge vont ainsi contribuer au courant de conduction.

#### **II.2.4.3. Effet de la nature d'électrode sur la conduction**

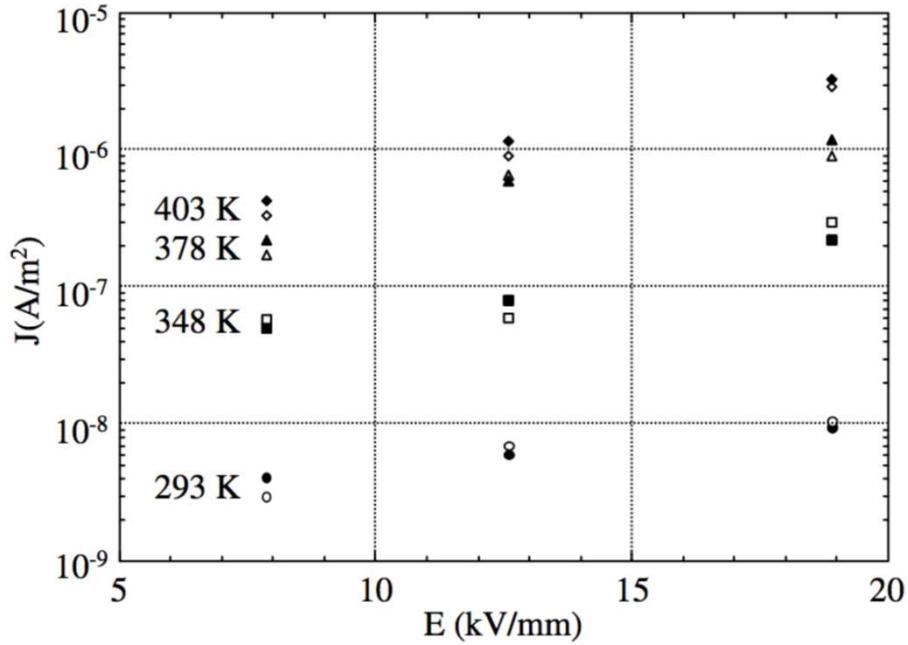
Afin de voir s'il y a une influence du travail de sortie des porteurs de charge sur le courant de conduction nous avons effectué des mesures de conduction sur l'alumine 96% muni de métallisation en or sur chacune de ses deux surfaces. Ces électrodes sont déposées, toujours par évaporation dans les mêmes dimensions que celle en aluminium. Ces mesures présentées sur la figure II.10 dans une échelle logarithmique ( $J/T^2$  en fonction de  $\sqrt{E}$ ), montrent que les densités de courants de conduction dans l'alumine munie d'électrodes en aluminium sont pratiquement identiques à celles dans l'alumine munie d'électrodes en or. Les travaux de sortie des deux métaux, 4eV pour l'aluminium et 5 eV pour l'or [MIC 77], sont différents. Il est évident que la nature de l'interface électrode/alumine n'influence pas le courant de conduction qui apparaît dans nos matériaux et dont le mécanisme est contrôlé par le volume et non donc par l'interface.



**Figure II.10 :** Comparaison entre les courants de conduction dans la représentation Schottky selon la nature d'électrode (alumine 96 %, 635  $\mu\text{m}$ ).

#### II.2.4.4. Effet de la pureté sur la conduction

L'effet de la pureté de l'alumine sur la conduction a été évalué en effectuant des mesures de courants sur l'alumine de pureté différente que celle considéré dans les mesures précédentes. Dans ces mesures, nous nous sommes intéressés à de l'alumine de pureté 99,5%, les champs électriques considérés sont forts, variant de 8 kV/mm à 19 kV/mm, et la gamme de température est restée la même que celle des mesures précédentes. Les résultats trouvés sont portés sur la figure II.11 et comparés à ceux de l'alumine 96%. Ils montrent que la densité de courant de conduction de l'alumine 99,5% suit le même comportement que l'alumine 96% et présente des valeurs pratiquement identiques. Cependant, pour les températures élevées, supérieure à 403 °K, une différence entre les courants de conduction peut apparaître. En effet les résultats trouvés par Agnel and al. [AGN 08] montrent une différence entre les courants de conduction des deux types d'alumines (96% et 99,5%) pour des températures supérieures 103 °C qui s'accroît avec la température.



**Figure II.11 :** Comparaison entre le courant de conduction de l'alumine 96% et l'alumine 99,5% (635  $\mu\text{m}$ ). Les points noirs correspondent aux alumines 96% et les points sans couleur correspondent aux alumines 99,5%.

### II.3. Conclusion

Les mesures de conduction ont été effectuées sur des céramiques en alumine de différentes puretés. Les résultats montrent une augmentation du courant de conduction en fonction de la température et du champ appliqué. Par ailleurs ils mettent en évidence un comportement de conduction ohmique pour des faibles champs électriques appliqués et un comportement limité par la charge d'espace pour des champs électrique forts. Le champ de transition entre le mode de conduction ohmique et le mode de conduction limité par la charge d'espace dépend fortement de la température. Quand la température augmente, le mode de conduction limité par la charge d'espace apparaît à des champs électriques moins forts.

La conduction électrique ne dépend pas uniquement des charges injectées mais elle dépend aussi de la nature et la densité des pièges présents dans le matériau. Les pièges mis en jeu dans la conduction électrique dans l'alumine sont les pièges peu profonds, ils correspondent essentiellement aux interfaces entre les grains d'alumine. Ces pièges immobilisent les porteurs de charge et les empêchent de ce fait de participer à la conduction.

Ils constitueraient donc un réservoir important de porteur de charge susceptible d'être libéré sous certaines conditions.

Par ailleurs, la nature du contact électrode/alumine, n'a aucune influence sur les mesures des courants de conduction ce qui nous amène à conclure que les courants régis par l'interface sont négligeables devant ceux contrôlés par le volume. D'autre part la pureté des échantillons influence très faiblement les courants de conduction pour les températures considérées dans notre étude.

# **Chapitre III : Rupture diélectrique de l'alumine**

Tout matériau utilisé comme isolant électrique doit supporter sans dommage les contraintes électriques appliquées. Pourtant, pour une certaine valeur de champ électrique, ce matériau perd ses propriétés isolantes et permet ainsi le passage du courant ; on assiste alors à un phénomène destructif irréversible appelé claquage électrique. Il est donc nécessaire de déterminer la valeur de ce champ pour tout matériau destiné à l'isolation.

Pour cette raison, nous avons étudié le claquage électrique des matériaux isolants auxquels nous nous intéressons, c'est-à-dire, les céramiques à base d'alumine.

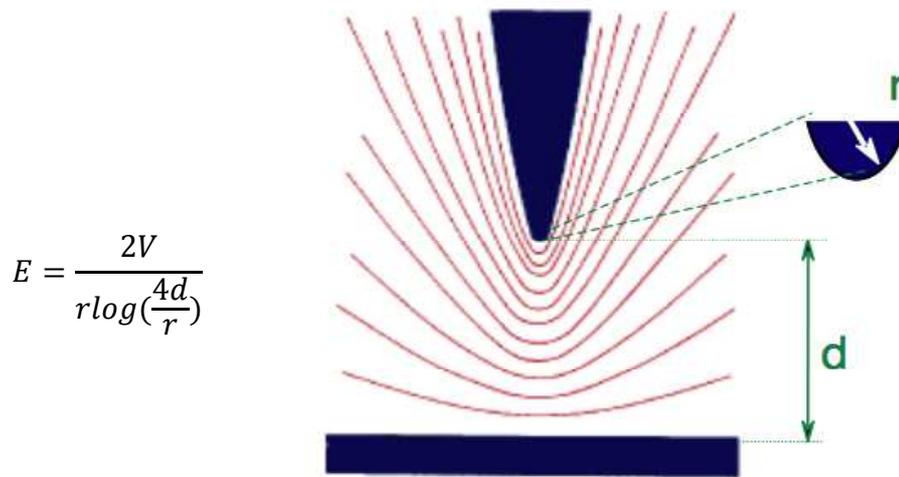
L'étude est faite sous tension alternative avec une fréquence de 50 Hz en faisant varier plusieurs paramètres : épaisseur des échantillons, teneur en alumine, vitesse de montée en tension et configuration des électrodes.

Ce chapitre présente d'abord l'étude expérimentale menée, les résultats obtenus et ensuite les observations optique et au MEB (microscopie électronique à balayage) des échantillons claqués.

### **III.1. Rigidité diélectrique des isolants solides**

#### **III.1.1. Définition**

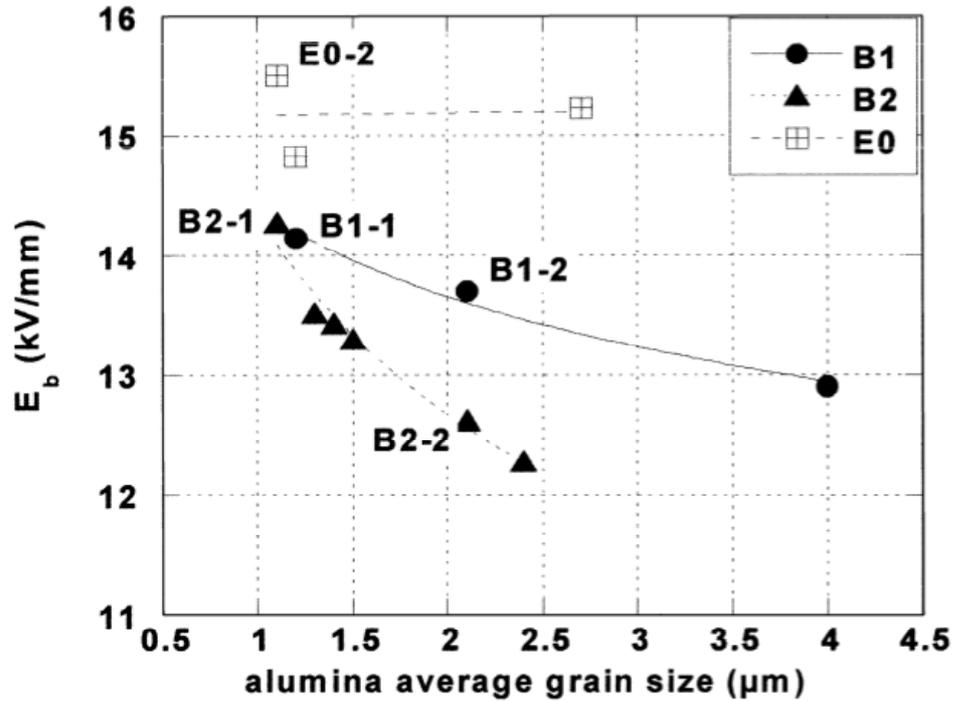
L'application à deux électrodes situées de part et d'autre de la céramique d'une tension croissante conduit à l'apparition puis à l'augmentation significative d'un courant circulant dans le matériau. A une certaine valeur limite de tension, le matériau subit une dégradation irréversible appelé claquage diélectrique, rendant impossible une nouvelle application de la tension. Le rapport de cette tension à la distance séparant les deux électrodes (épaisseur de la céramique) selon la norme ASTM (American society for testing and materials) 149 [AST 04] est appelé rigidité diélectrique et s'exprime en (V/m). Cette norme indique l'utilisation d'une configuration géométrique des électrodes de type plan-plan pour être sous champ uniforme et éviter les renforcements locaux du champ électrique susceptible d'apparaître sous d'autres configurations d'électrodes. Dans le cas, par exemple, d'une configuration d'électrode pointe-plan le champ local au voisinage de l'électrode pointe est donné par la relation :



**Figure III.1** : Représentation du champ électrique en configuration pointe/plan.

Dans les céramiques, la rigidité diélectrique dépend de la microstructure [TOU 07] autrement dit les facteurs intrinsèques tels que la porosité, l'homogénéité et la taille des grains. Ces facteurs sont directement reliés aux conditions de leurs élaborations (le taux d'ajout, la température de frittage,...). Quant aux paramètres extrinsèques, on peut citer la température, la tension et la vitesse de montée en tension.

De nombreux travaux ont montré cette dépendance de la rigidité diélectrique des facteurs intrinsèques. Ainsi Shin et al. [SHI 89] ont montré une diminution de la rigidité diélectrique de titanate de baryum,  $\text{BaTiO}_3$ , d'une unité quand la porosité passe de  $1 \mu\text{m}$  à  $15 \mu\text{m}$ . Les travaux de Tunkasiri et al. [TUN 96], sur l'influence de la taille de grains pour des échantillons de  $\text{BaTiO}_3$  de  $1 \text{ mm}$  d'épaisseur ont montré une variation de la rigidité diélectrique de  $2,5$  à  $15 \text{ kV/mm}$  pour une variation de taille de grains allant de  $3,5$  à  $25 \mu\text{m}$ . Ces mêmes observations ont été aussi remarquées sur l'alumine. En effet, les résultats obtenus par Leibault et al. [LEI 01] sur trois types d'alumine (figure III.2) montre que la rigidité diélectrique a tendance à diminuer quand la taille des grains augmente quelque soit la nature et la quantité d'ajouts.



**Figure III.2** : Evolution du champ électrique de claquage en fonction de la taille des grains de trois types d'alumines [LEI 01].

### III.1.2. Influence de divers paramètres sur la rigidité diélectrique

Comme cela a été indiqué dans les paragraphes précédents, la température, l'épaisseur ainsi que d'autres phénomènes physiques, chimiques et électriques possèdent un impact non négligeable sur la rigidité diélectrique [MEN 97]. Nous nous intéresserons ici qu'aux paramètres les plus essentiels.

#### III.1.2.1. Tension appliquée

L'influence de la tension se schématise par sa forme ; en continu, le facteur essentiel est la polarité, en alternatif cela va dépendre de la fréquence.

Il a été constaté expérimentalement que la rigidité diélectrique en tension continue est voisine de celle en tension alternative multipliée par  $\sqrt{2}$  et que dans la majorité des matériaux, la tension de claquage augmente avec la vitesse de l'application de la tension. Cependant, il faut prendre ces résultats avec prudence car ce que l'on constate sur certains matériaux n'est pas forcément reproduit sur d'autres. En effet, pour trois types de populations d'échantillons de nitrure d'aluminium, AlN, d'épaisseurs 0,63 mm, Ruemenapp [REU 99] a mesuré des

valeurs de champ de rupture comprises entre 50 et 60 kV/mm en AC et 100-130 en DC. Dans ce cas le rapport s'avère plus important qu'un facteur de  $\sqrt{2}$  (Figure III.3.a). Par ailleurs des mesures de rigidité diélectrique menée par Owate et al. [OWA 90] sur le verre céramique MgO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>-TiO<sub>2</sub> ont montré l'insensibilité du champ de rupture par rapport à la vitesse de montée en tension (III.3.b)

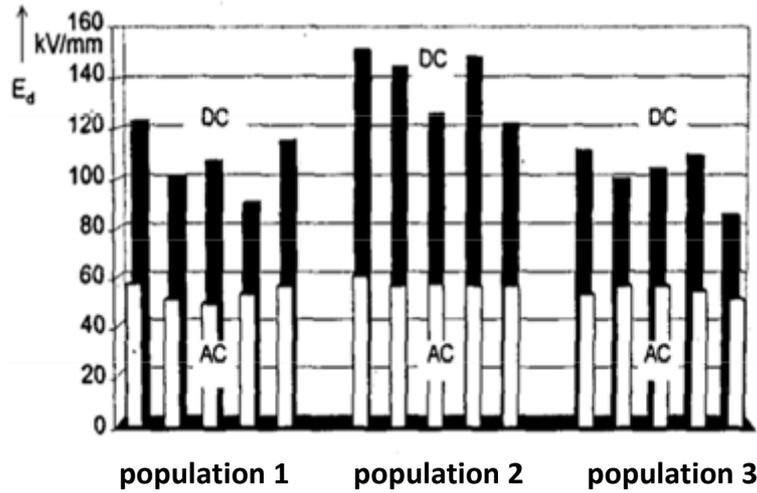


Figure III.3.a : Comparaison entre le champ électrique de claquage de AlN en tension continue et en tension alternative [REU 99].

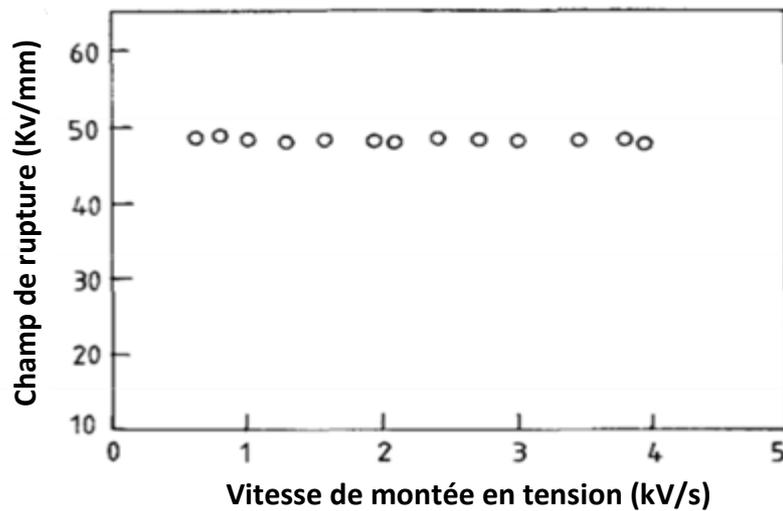
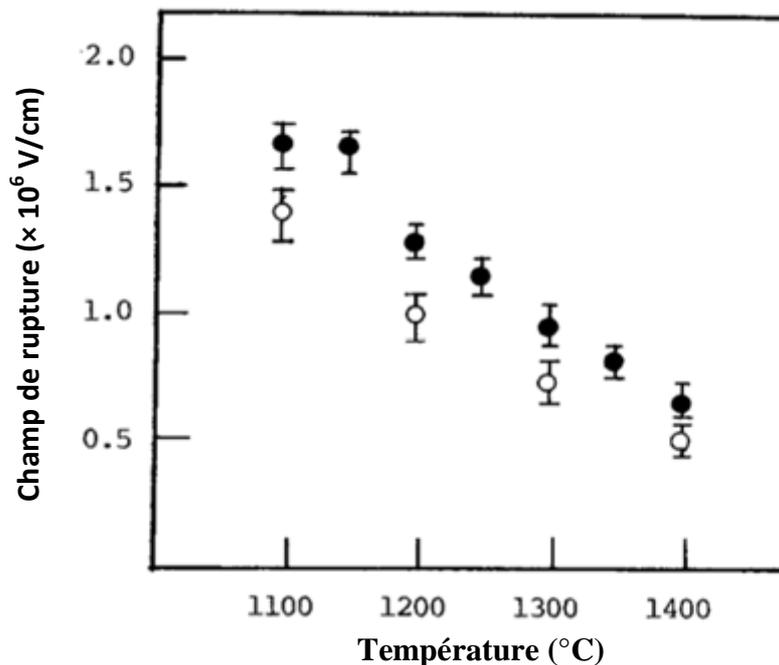


Figure III.3.b : Champ électrique de claquage en fonction de la vitesse de montée en tension [OWA 90].

### III.1.2.2. Température

Le comportement diélectrique à la rupture des isolants solides diffère selon qu'on se place dans la plage haute ou basse température par conséquent il faut considérer deux gammes de température, haute et basse températures. Dans le cas des céramiques, la gamme haute température correspond aux températures au dessous de la température de frittage mais voisine de cette dernière. Contrairement à la gamme basse température, la rigidité diélectrique des céramiques dans la gamme haute température a tendance à diminuer d'une manière très significative. La figure III.4 illustre la variation de la rigidité diélectrique en fonction de la température pour l'oxyde de magnésium (monocristallin et polycristallin).



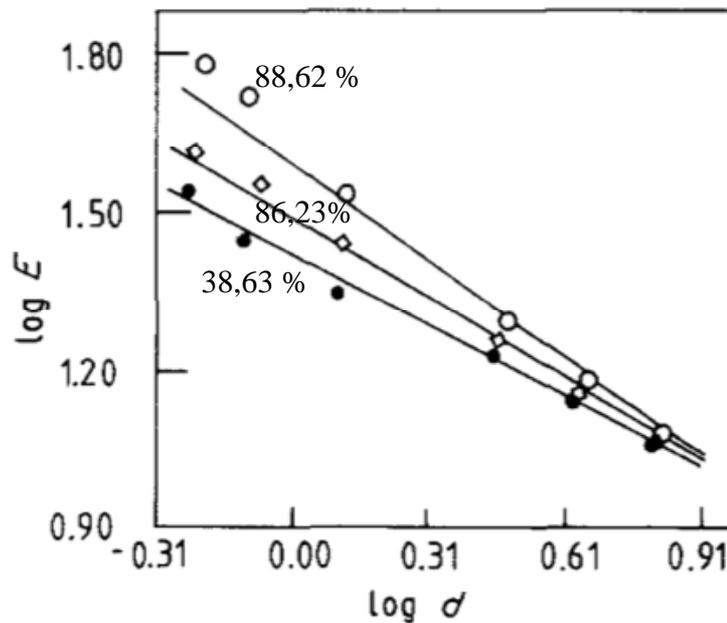
**Figure III.4 :** Evolution de la rigidité diélectrique de l'oxyde de magnésium polycristallin (cercles noirs) dans la gamme haute température [MUR 85].

### III.1.2.3. Epaisseur

Généralement, l'augmentation de l'épaisseur des échantillons a pour effet de diminuer la rigidité diélectrique. Certains auteurs l'ont expliqué par l'augmentation de la densité de défauts dans le volume soumis au champ, qui réduit ainsi considérablement la rigidité diélectrique. Cependant l'évolution de la rigidité diélectrique en fonction de l'épaisseur peut

être influencée par la température. En effet dans le polyfluorure de vinylidène (PVDF) de 12 $\mu$ m d'épaisseur le champ électrique de rupture à température ambiante décroît avec l'épaisseur alors que pour des températures comprises entre 50 et 150°C il est indépendant de l'épaisseur.

Par ailleurs, la figure II.5 illustre l'évolution de la rigidité diélectrique de trois types de vitrocéramiques avec des taux de cristallinité de 88,62%, 86,23 % et 38,63 % respectivement en fonction de l'épaisseur.



**Figure III. 5 :** Variation du champ de claquage des vitrocéramiques de différents taux de cristallinité en fonction de l'épaisseur [OWA 90].

L'analyse des trois courbes a conduit à des expressions de la rigidité diélectrique selon des lois en puissance suivantes :

$$E=46d^{0,70} \quad \text{pour la vitrocéramique avec un taux de cristallinité de 88,62\%}$$

$$E=35d^{0,66} \quad \text{pour la vitrocéramique avec un taux de cristallinité de 86,23\%}$$

$$E=30d^{0,57} \quad \text{pour la vitrocéramique avec un taux de cristallinité de 38,63\%}$$

où  $E$  est le champ électrique de rupture et  $d$  représente l'épaisseur.

D'autres études expérimentales sur des isolants solides d'épaisseurs variant de quelques micromètres à quelques millimètres tendent à confirmer généralement que le champ de claquage est généralement proportionnel à l'épaisseur  $d$  selon la loi :

$$E=Ad^n$$

où  $A$  et  $n$  sont des constantes caractéristiques du matériau.

#### III.1.2.4. La charge d'espace

Un des principaux paramètres susceptibles d'accélérer la dégradation de l'isolation est la formation d'une charge d'espace au sein du matériau [INU 82, LAU 99]. Par définition, cette charge d'espace correspond à l'ensemble des charges réelles, positives ou négatives, contenue dans un isolant, ce qui inclut les charges de surface et de volume. Elle peut être d'origine extrinsèque ou intrinsèque (générées soit par électrodissociation d'espèces neutres soit par ionisation des constituants du solide par interaction avec des rayonnements ou des particules énergétiques). De la présence de cette charge peut résulter une distorsion du champ électrique dans le matériau isolant qui présentera alors des zones d'intensification du champ interne, susceptibles de jouer un rôle important dans la rupture diélectrique du matériau [ZEB 97].

Plusieurs études ont tenté d'élucider le processus par lequel la charge d'espace est déstabilisée sous l'effet d'un champ électrique suffisamment fort accélérant de ce fait la dégradation du matériau. Il a été établi par Blaise et d'autres auteurs [BLA 94, ZER 08] que le risque de claquage dans les isolants solides devient grand quand le champ électrique local atteint le champ nécessaire au dépiégeage des porteurs de charges provoquant ainsi la déstabilisation de la charge d'espace.

### III.2. Traitement statistique de la rupture diélectrique

Le champ de claquage électrique des isolants solides ne peut être décrit par une seule valeur expérimentale. En effet, on est confronté à un phénomène aléatoire en raison de la difficulté d'obtenir des échantillons d'essais identiques en tout point (distribution des défauts, d'impuretés,...).

Parmi les modèles statistiques, la distribution de Weibull initialement développée pour traiter la rigidité mécanique [WAC 09] semble la mieux adaptée pour une étude statistique de la rupture diélectrique.

La probabilité cumulée selon la distribution de Weibull à deux paramètres est donnée par [CHA 93] :

$$P(x) = 1 - \left( \exp \left[ -\left(\frac{x}{\alpha}\right)^\beta \right] \right) \quad \text{III.1}$$

La variable  $x$  peut être le champ de rupture, le temps caractéristique de la rupture, la constante  $\beta$  est le paramètre de forme.

Dans notre étude  $x$  représente le champ de claquage électrique obtenu en divisant la tension de claquage par l'épaisseur de l'échantillon ( $E = \frac{V}{d}$ ) ; par conséquent le deuxième paramètre  $\alpha$ , représente la valeur du champ électrique de claquage correspondant à une probabilité de rupture égale à 63,2%.

Par le passage à l'échelle logarithmique, l'équation III.1, en remplaçant  $x$  par  $E$ , peut se mettre sous cette forme :

$$\text{Logln} \frac{1}{1 - P(E)} = \beta \text{Log} \frac{E_i}{\alpha} \quad \text{III.2}$$

Par ailleurs la probabilité cumulée  $P$  est calculée pour chaque champs  $E_i$  en utilisant la relation :

$$P(E_i) = \left( \frac{i}{N + 1} \right) 100 \% \text{ si } N \text{ est supérieur à } 10 \text{ [FOT 90]} \quad \text{III.3}$$

où  $N$  est le nombre d'échantillons claqués

$i$  est la valeur du rang pour le champ  $E_i$

Les paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  peuvent être déterminés par deux méthodes :

- **La méthode graphique**

Elle consiste à porter sur une échelle logarithmique les points  $(E_i, \ln \left[ \frac{1}{1 - P(E_i)} \right])$  avec  $P(E_i)$  donné par l'équation III.3, et déterminer la droite de " Weibull " qui adhère le mieux à ces points. Le paramètre  $\alpha$  correspond au point dont l'ordonnée est donnée par  $P(E_i) = 63,2\%$  ( $\text{Logln}(\frac{1}{1 - P(E_i)}) = 0$ ). Le paramètre  $\beta$  représente la pente de la droite de Weibull.

- **La méthode numérique**

Si différentes expériences sont effectuées dans les mêmes conditions, la méthode graphique conduit à différentes droites qui adhèrent aux points expérimentaux, avec un couple de paramètres  $(\alpha, \beta)$  associés à chaque droite. Ces paramètres  $(\alpha, \beta)$  sont différents d'une expérience à une autre alors que ces dernières sont typiquement identiques.

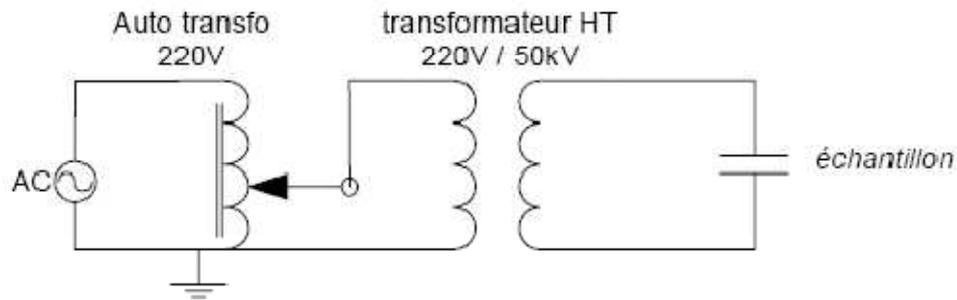
Cette variabilité peut être quantifiée en se basant sur une seule expérience, en utilisant la notion de l'intervalle de confiance contenant la vraie valeur du champ électrique (où autre variable) avec une forte probabilité. Le calcul des limites des intervalles de confiance des paramètres de Weibull est développé par J. F. Lawless [STO 79] et le programme de calcul se référant à cette méthode a été mis au point par G. C Stone [STO 86].

Les deux valeurs limites des intervalles de confiance pour chaque paramètre ainsi que pour d'autres probabilités peuvent être déterminées et portées sur le graphe de Weibull. On peut alors tracer les deux courbes de part et d'autre de la droite de Weibull délimitant les intervalles de confiance.

### III.3. Mesure expérimentale de la rigidité diélectrique de l'alumine

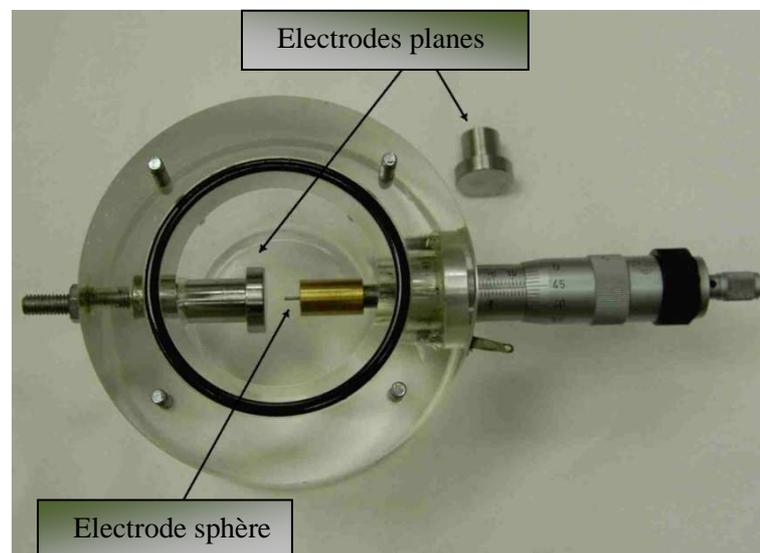
#### III.3.1. Dispositif et protocole expérimentaux

Le dispositif expérimental permettant la mesure du champ de claquage est représenté par un circuit électrique illustré sur la figure III.6. Il est composé d'un générateur haute tension (amplificateur haute tension), une cellule de mesure remplie d'une huile isolante (FC72) [RHO 98] qui minimise le risque de survenue des décharges partielles ou de tout cheminement, d'un multimètre et d'un ensemble de résistances de protection.



**Figure III.6 :** Schéma électrique du dispositif de rupture diélectrique.

La cellule de mesure dans laquelle est placé l'échantillon entre deux électrodes est représentée sur la photographie III.1. La distance inter-électrode peut être réglée avec une vis nanométrique de telle manière à fixer l'échantillon. Deux systèmes d'électrodes, en fonction de leur configuration géométrique sont utilisés. Dans le premier, les deux électrodes sont planes et identiques possédant un diamètre égale à 15 mm alors que dans le deuxième, une des électrodes est plane (15 mm de diamètre) et l'autre est sphérique dont le rayon égal à 0,6 mm. Ces électrodes sont en acier inoxydable.



**Photo III.1 :** Cellule de mesure de rupture et les différents types d'électrodes

La mesure de la rigidité diélectrique consiste à appliquer une tension en forme de rampe à l'échantillon jusqu'au claquage. Le générateur haute tension est équipé d'un système de montée en tension linéaire, la vitesse de montée peut être réglée et fixée à des valeurs

comprises entre 0,5V/s et 20 kV/s. Les tests de rupture se sont déroulés sous une rampe de tension de forme sinusoïdale de fréquence 50 Hz.

Les principales caractéristiques des matériaux à base d'alumine utilisés sont portées sur le tableau III.1.

Les mesures de rigidité diélectrique ont été effectuées pour des alumines de différentes puretés : 92%, 96% et 99,6% présentant des épaisseurs variant de 127 $\mu$ m à 2,54 mm ainsi que pour l'alumine monocristalline (saphir).

Les échantillons soumis aux tests de claquage (mis à part le saphir) sont coupés des plaques de différentes alumines à l'aide d'une pointe diamantée ou scie diamantée dans les dimensions de 3 $\times$ 3 cm.

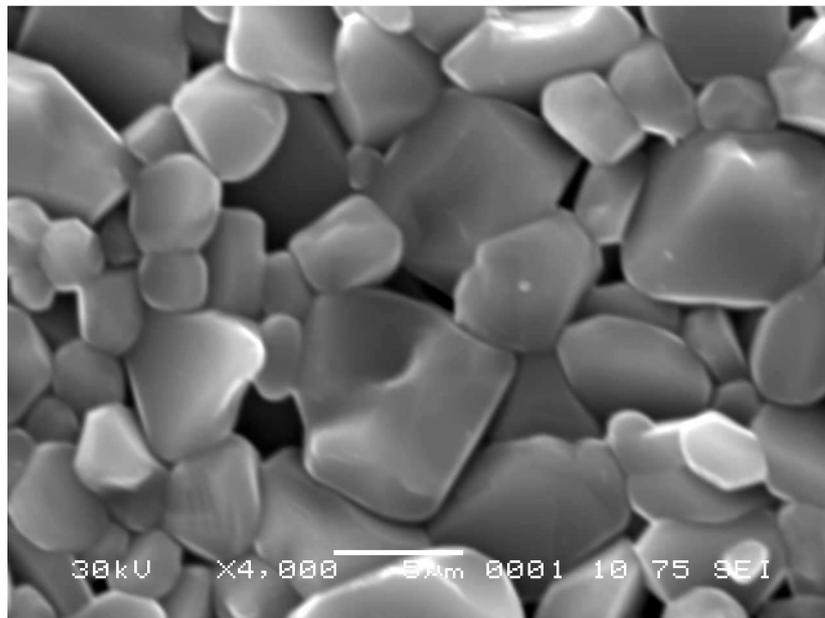
**Tableau III.1** : Principales caractéristiques de l'alumine 92–99,5 % à température ambiante [COO 08].

Densité ( g/cm <sup>3</sup> )	3,72–3,90
Taille des grains ( $\mu$ m)	6
Température de fusion ( <sup>0</sup> C)	~ 2050
Module élastique (GPa)	303–370
Resistance en compression (MPa)	300–377
Conductivité thermique (W/m <sup>0</sup> K)	24,7–30
Constante diélectrique (1MHz)	9–9,7
Résistivité volumique ( $\Omega$ cm)	10 <sup>14</sup>

### III.3.2. Caractérisation de l'alumine

#### III.3.2.1. Analyse physico-chimique

Les observations des échantillons d'alumine sont réalisées à l'aide d'un microscope à balayage électronique (MEB) JOEL avec une tension d'accélération de 30kV. Afin d'éviter l'accumulation des charges électriques qui risquent de créer des champs parasites et de perturber l'image, les échantillons ont été préalablement recouvert d'une fine couche d'or d'épaisseur 18 nm par évaporation sous vide. La micrographie III.1 représente respectivement la morphologie de la surface des échantillons avec un agrandissement de 4000. D'après nos observations, on ne remarque pas de différence de morphologie entre les différents échantillons de différentes puretés.



**Micrographie III.1 :** Vue avec le MEB de la surface d'un échantillon de l'alumine 96%.

#### III.3.2.2. Diffractométrie des rayons X

Le diffractomètre utilisé est de type D4 Brucker. La longueur d'onde du faisceau est égale à  $1.54 \text{ \AA}$ . Le spectre de diffraction X obtenu est donné par la figure II.7 (voir chapitre II). La comparaison des raies de ce spectre avec les fiches ASTM montre que tous les pics correspondent à l'alumine  $\alpha$  dont la structure est hexagonale.

### II.3.2.3. Composition chimique

Les analyses ICP (Inductively coupled plasma) donnant la composition chimique élémentaire et dont le principe consiste à ioniser l'échantillon en l'injectant dans un plasma, sont illustrées sur le tableau III.2. Ce dernier montre que dans les échantillons à 92% d'alumine, les ajouts sont composés majoritairement de Si, Fe, Mn, Ti, et B avec un taux de 1% pour chaque élément, dans les échantillons à 96% en alumine, on retrouve le Si et B avec un taux de 1,1% pour chaque élément et enfin dans ceux à 99,5% en alumine, on retrouve le Mg et le Si avec un taux de 0,1 % pour chaque élément. Il faut signaler au passage que ces éléments se trouvent sous forme d'oxyde dans les céramiques.

**Tableau III.2 :** La composition chimique des différentes aluminés (92%, 96% et 99.5%).

Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	B	Si	Mg	Ca	Fe	Na	Ba	Y	Cr	Mn	Zr	Ti
%	%	%	%	%	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm
99.5	–	–	0.16	0.15	400	300	90	45	40	20	<20	<20
96	0.86	1.1	0.47	0.21	290	800	30	20	20	<20	20	38
92	0.82	1.1	425	0.3	1.06	0.12	180	30	150	1.61	60	1
			ppm		%	%				%		%

### III.3.2.4. Energie de surface

L'énergie libre de surface d'un solide peut être définie comme étant la quantité de travail qu'il a fallu dépenser pour la création d'une nouvelle unité de surface [JOH 71]. Elle est estimée en mJ/m<sup>2</sup>.

L'appareil utilisé pour les mesures de ces énergies est un goniomètre de type Digitrop. Le principe consiste en la mesure des angles de contact de différents liquides déposés sous forme de goutte sur l'échantillon. Les liquides utilisés pour nos mesures sont l'eau, la formamide et le diodomethane. L'énergie libre de surface est alors obtenue par la résolution de l'équation Owens-Wendt [LRC 08].

Les mesures sont réalisées à température ambiante sur des échantillons d'alumine d'épaisseurs 635  $\mu\text{m}$  pour les puretés 92%, 96% et 99,6%. Les résultats obtenus sont donnés par le tableau ci-dessous :

**Tableau III.3 :** L'énergie de surface de l'alumine 635  $\mu\text{m}$  selon la teneur en alumine.

Pureté %	92	96	99,6
Energie de surface $\text{mJ/m}^2$	22.3	55	40

### III.3.3. Résultats expérimentaux de la rupture diélectrique dans l'alumine

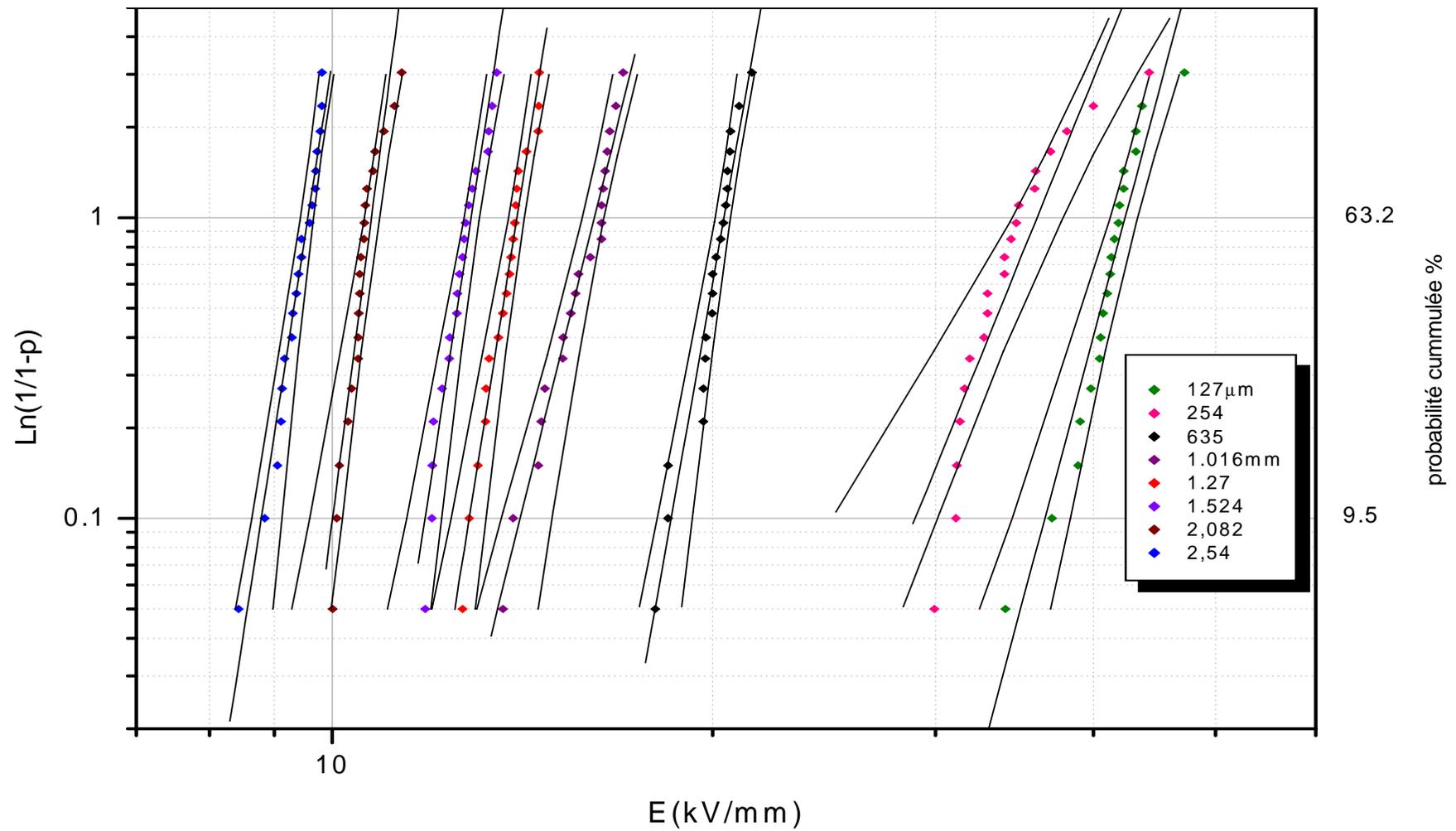
Les tableaux III.4.a et III.4.b rassemblent les résultats des champs de claquage obtenues sur une vingtaine de mesures pour des puretés 96 % et 99,5 % respectivement. L'épaisseur des échantillons varie de 0,127 à 2,5 mm. La vitesse de montée en tension jusqu'au claquage utilisée est 1.66 kV/s. La valeur maximale atteinte lors de la montée en tension et qui correspond à la tension de claquage est affichée sur un multimètre relié au générateur de tension.

**Tableau III.4.a :** Valeurs expérimentales des champs de claquages des échantillons d'alumine de pureté 96 % pour les différentes épaisseurs.

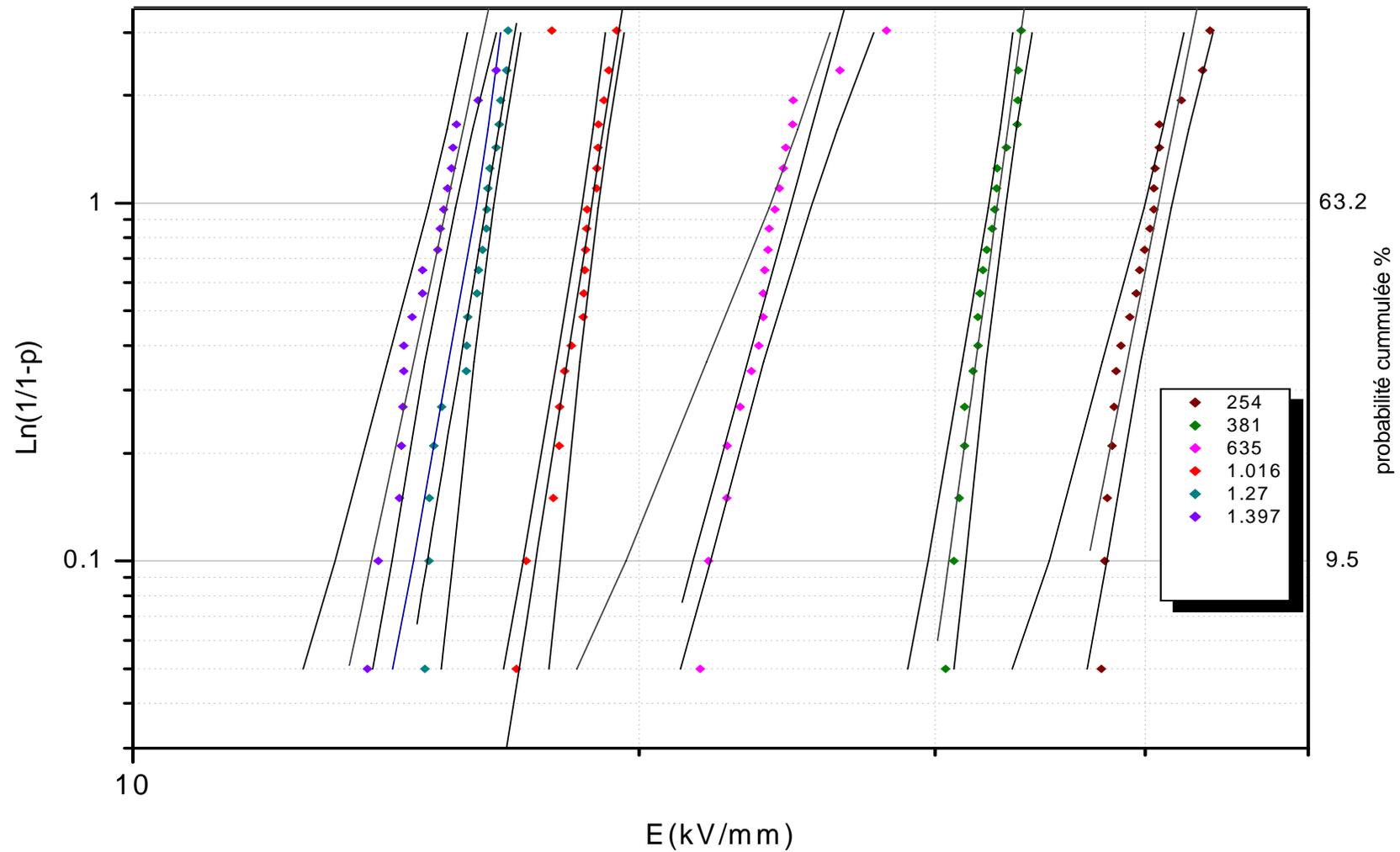
Champs électriques des Points de rupture (kV/mm)																				
Epaisseur (mm)	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20
0,127	39,8	41,3	37,1	40,5	42	47,2	43,2	40,7	43,2	41,3	38,9	34,1	43,7	40,5	41,9	41,0	39,0	42,6	41,6	42,3
0,254	44,3	34	40,2	34,8	31,6	30	33	31,1	31,2	31,4	37	38,1	35,9	36	31,9	34,5	33	35	33	34
0,635	20,3	18,4	20	19,7	20,4	19,7	20,5	19,7	20,5	20	20,6	21	21,5	20	20	19,8	20,7	18	20,1	18,4
1,016	16,6	16,4	15,6	16,3	13,6	14,7	16,8	13,9	16,3	14,6	15,7	14,6	16,3	16,5	15,4	16,4	17	15,2	16	15,2
1,27	13,8	13,8	13,5	14,6	13,2	12,8	13,9	13	13,6	13,9	13,7	14	14	14,2	14,6	13,3	14	14,6	13,2	12,7
1,524	12,8	13,3	13	12	12	13,5	12,7	12,6	12,7	12,5	12,4	12	12,4	12,7	13,3	12,9	12,2	11,8	13	13,4
2,082	11,2	10,5	10,5	10,5	10,5	10,3	10,5	10,4	10,8	11	10,6	10,6	10	11,3	10,8	10,6	10,5	10,6	10	10,1
2,54	9,6	9,8	9,5	9,7	9,3	9	9,8	9,4	9,6	9,5	9,2	9,1	9,7	9,3	9,4	9,8	9,13	9,4	9,7	9,8

**Tableau III.4.b :** Valeurs expérimentales des champs de claquages des échantillons d'alumine de pureté 99,5 % pour les différentes épaisseurs.

Epaisseur (mm)	Champs électriques des Points de rupture (kV/mm)																			
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20
0,254	39,7	40,8	40,8	42	40,5	40,5	39,5	40,3	38,3	40	39,2	37,8	37,6	40,5	38,4	38	38,7	43,7	43,2	38,2
0,381	31,2	30,4	30,8	31,8	31,6	32	31	31,9	32,5	32,4	33,6	33,6	33,7	33,6	32,2	31,8	31,2	32,6	33	32,6
0,635	23,7	26,3	23,7	24,2	24,1	23,3	23,6	24,7	22	23	23,7	28	22,6	21,7	22,5	24,7	23,9	23,9	24,4	24,4
1,016	18,6	17,1	18,9	17,8	17,9	17,9	18,5	18,6	18,6	18,2	18,6	18,5	16,9	18,9	19,1	18,1	18,9	18,9	19,2	19,4
1,27	15,8	16,3	16,7	15,3	16,5	15	15	15,8	16,7	16,2	16,3	16	14,9	15,8	16,5	16,2	15,1	16,1	16	16,4
1,397	13,8	15,5	15,2	15,2	14,9	16,4	16	15,6	14,5	14,7	14,4	15,3	14,7	14	14,4	14,9	14,5	14,5	15,4	15,5



**Figure III.7.a :** La probabilité cumulée du champ de claquage pour l'alumine 96% pour différents épaisseurs selon le diagramme de Weibull avec des intervalles de confiance à 90 %.



**Figure III.7.b :** La probabilité cumulée du champ de claquage pour l'alumine 99,5% pour différents épaisseurs selon le diagramme de Weibull avec des intervalles de confiance à 90 %.

Les résultats expérimentaux sont représentés sur les figures III.7.a et III.7.b. Ces dernières illustrent l'évolution de la probabilité cumulée  $P_c$  de claquage dans l'alumine en fonction du champ électrique et l'épaisseur pour les puretés de 96% et de 99,5% dans le diagramme de Weibull. Les intervalles de confiance pour chaque population de points ont été calculés selon la méthode Lawless [STO 79] et reportés sur les mêmes figures, ils correspondent aux points donnés par les courbes qui se trouvent de part et d'autre de chaque population de points.

Dans les tableaux ci-dessous nous avons porté les valeurs du champ électrique de claquage avec une probabilité de 63,2 %, selon l'épaisseur et la pureté de l'alumine ainsi que les intervalles de confiance à 90% déterminés par la méthode de Lawless.

**Tableau III.5.a :** Les valeurs du champ de claquage selon la statistique de Weibull et les limites supérieur et inférieure des intervalles de confiance à 90 % (alumine 96 %).

Epaisseur (mm)	0,127	0,254	0,635	1,016	1,27	1,524	2,082	2,54
Champ électrique (kV/mm)	42,29	36,1	20,37	16,08	13,99	12,9	10,74	9,55
Limites des intervalles de confiance (kV/mm)	41,24/ 43,38	34,49/ 37,82	20,08/ 20,66	15,77/ 16,40	13,79/ 14,20	12,71/ 13,09	10,6/ 10,9	9,43/ 9,66

**Tableau III.5.b :** Les valeurs du champ de claquage selon la statistique de Weibull et les limites supérieure et inférieure des intervalles de confiance à 90% (alumine 99,5 %).

Epaisseurs (mm)	0,254	0,381	0,635	1,016	1,270	1,397
Champ électrique (kV/mm)	40,73	32,67	24,63	18,71	16,2	15,29
Limites des intervalles de confiance (kV/mm)	39,98/ 41,50	32,29/ 33,05	23,94/ 25,35	18,51/ 18,92	16,01/ 16,39	15,01/ 15,57

### III.3.4. Evolution du champ électrique de rupture

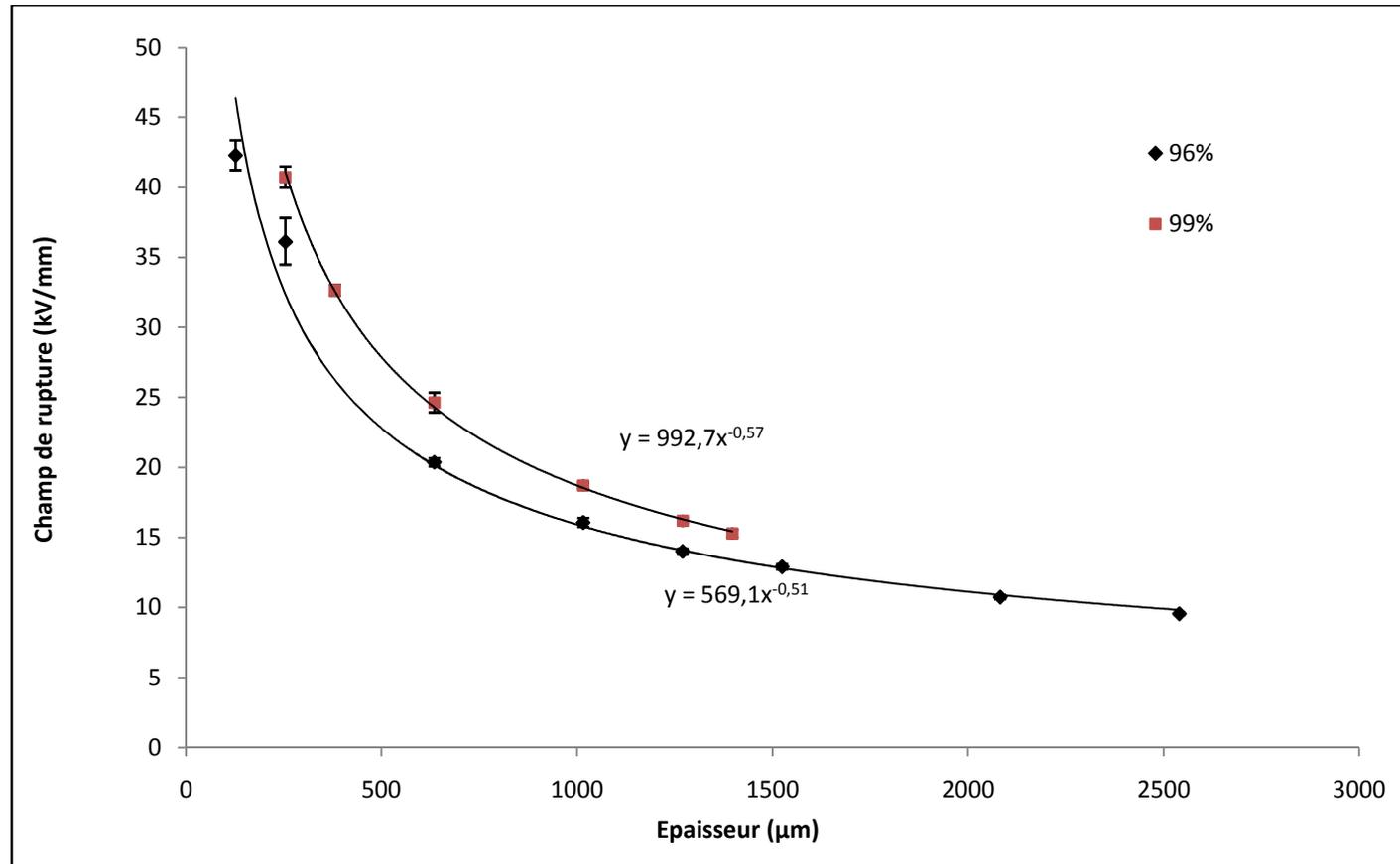
#### III.3.4.1. Effet de l'épaisseur

Les valeurs du champ de claquage en fonction de l'épaisseur sont reportées sur la figure III.9, chaque point représente le champ de claquage à 63,2 % de probabilité de claquage et a été déterminé sur un ensemble de vingt mesures par la statistique de Weibull. Les intervalles de confiance à 90% ont été déterminés pour chaque point et reporté sur la figure III.8. Comme les autres isolants solides déjà étudiés, la rigidité diélectrique des échantillons d'alumine diminue avec l'épaisseur. Pour des épaisseurs inférieures à 635  $\mu\text{m}$ , la diminution de la rigidité diélectrique est plus importante que pour les échantillons dont les épaisseurs sont supérieures à 635  $\mu\text{m}$ . Par ailleurs l'analyse des courbes de la rigidité diélectrique des échantillons de pureté 96% et les échantillons de pureté de 99,5 % nous confirme la variation en puissance du champ électrique et nous conduit aux expressions suivantes :

$$E = 992,7d^{-0,57} \text{ pour l'alumine 99,5\%}$$

$$E = 569,1d^{-0,51} \text{ pour l'alumine 96\%}$$

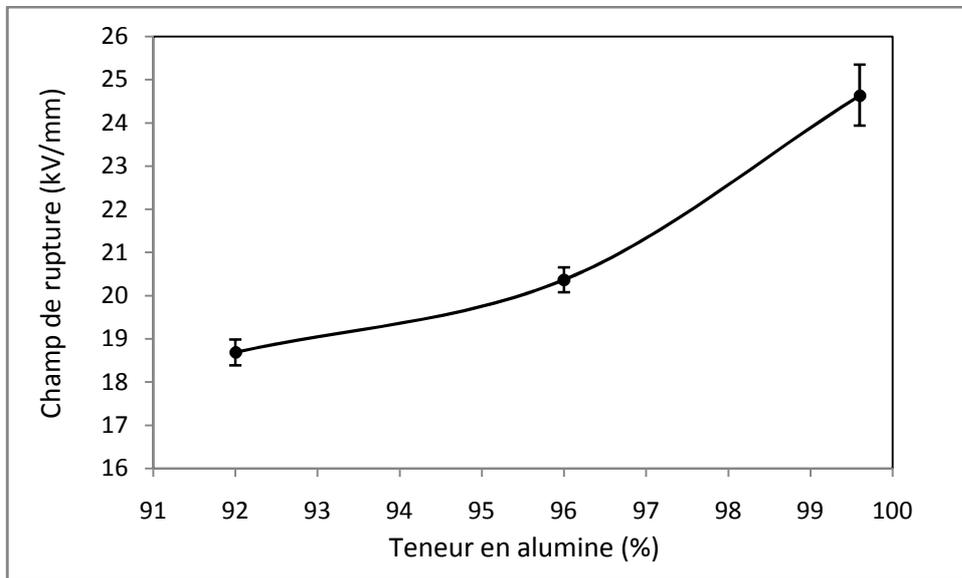
où  $d$  représente l'épaisseur et  $E$  le champ électrique de claquage correspondant.



**Figure III.8 :** Evolution du champ électrique de claquage de l'alumine 96 % et l'alumine 99,5 % en fonction de l'épaisseur.

### III.3.4.2. Effet de la pureté

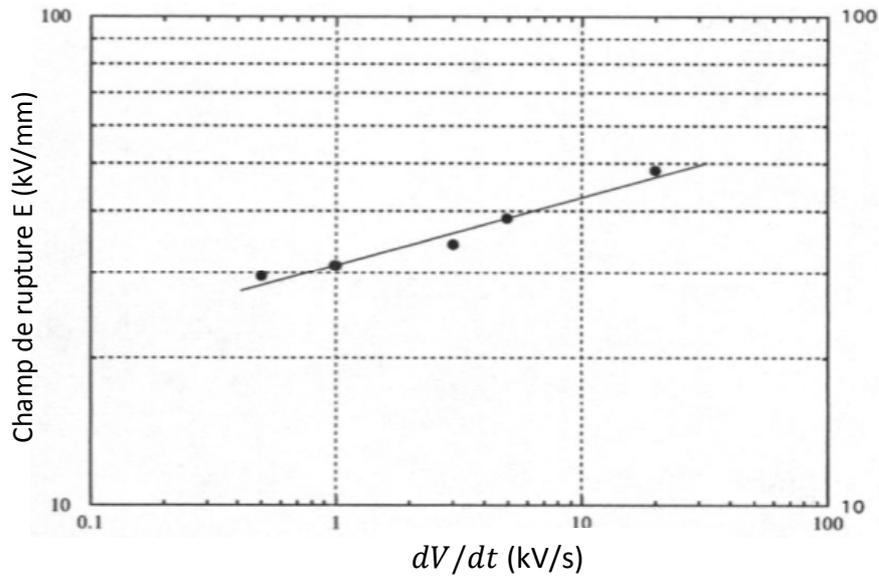
Les mesures de la rigidité diélectrique des échantillons d'alumines d'épaisseur de 635  $\mu\text{m}$  ont été effectuées pour trois puretés différentes (92%, 96% et 99.5%). Les résultats obtenus selon la statistique de Weibull avec une probabilité de 63,2 % sont reportés sur la figure III.9. Elle montre que la rigidité diélectrique augmente quand les échantillons sont plus purs. En effet cette variation est estimée à 35 % en passant des échantillons de pureté 96% à des échantillons de pureté de 99.5%. Connaissant la composition chimique des alumines de différentes puretés (tableau III.2), on en déduit que seule la teneur en alumine possède un impact sur la rigidité diélectrique et ce quelque soit la nature ainsi que les taux des différents ajouts et impuretés.



**Figure III.9 :** Evolution du champ électrique de claquage en fonction de la teneur en alumine pour une épaisseur de 635  $\mu\text{m}$ .

### III.3.4.3. Effet de la vitesse de montée en tension

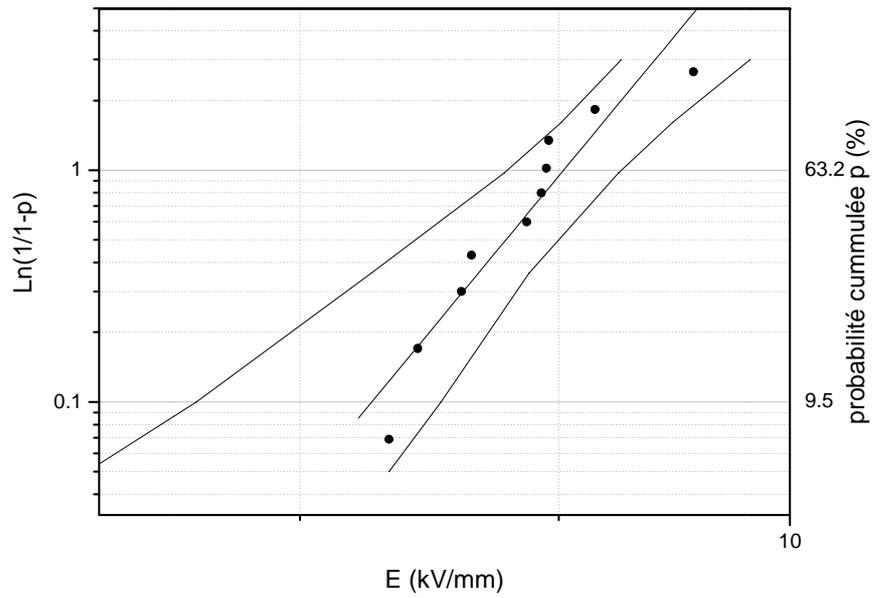
Le même protocole expérimental est utilisé pour la détermination du champ de rupture en fonction de la vitesse de montée en tension. Afin d'observer l'effet de la vitesse de montée en tension sur la rigidité diélectrique, on a fait varier la vitesse de 0,66 à 20 kV/s. Les tests de rupture sont effectués sur des échantillons d'épaisseur de 254  $\mu\text{m}$  et les vingt points expérimentaux ont été traités avec la statistique de Weibull. Les résultats obtenus représentés par la figure III.10, montrent que dans le domaine considéré de vitesse, la rigidité augmente de 30 à 49 kV/mm.



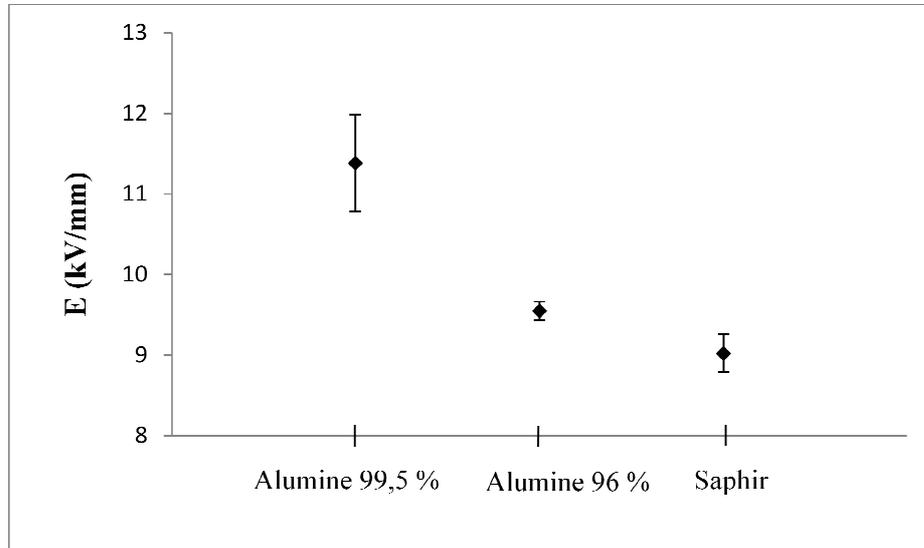
**Figure III.10 :** Evolution du champ électrique de claquage de l'alumine 96 % d'épaisseur 254  $\mu\text{m}$  en fonction de la vitesse de montée en tension.

#### III.3.4. 4. Rupture de l'alumine monocristalline (saphir)

La rigidité diélectrique de l'alumine monocristalline a été étudiée et comparée à celles des alumines polycristallines. L'alumine monocristalline considérée dans cette étude est le saphir d'épaisseur 2,54 mm et de pureté 99,99 %. Les tests de rupture se sont déroulés sous le même protocole expérimental décrit précédemment (fréquence : 50Hz, vitesse de montée : 1.66 kV/s, ...). Dix points de rupture ont été utilisés pour déterminer la rigidité diélectrique du saphir avec la statistique de Weibull (Figure III.11.a). Le résultat obtenu est comparé à ceux de l'alumine 96 % et 99,5 % et reporté sur la figure III.11.b. Cette figure indique que l'alumine monocristalline présente une rigidité diélectrique médiocre comparée à celle de l'alumine 96 % et de l'alumine 99,5 % de même épaisseur.



**Figure III.11.a :** La probabilité cumulée du champ de claquage pour le saphir selon le diagramme de Weibull avec des intervalles de confiance à 90 %.



**Figure III.11.b :** Rigidité diélectrique du saphir comparé à celles des alumines 96% et 99,5%.

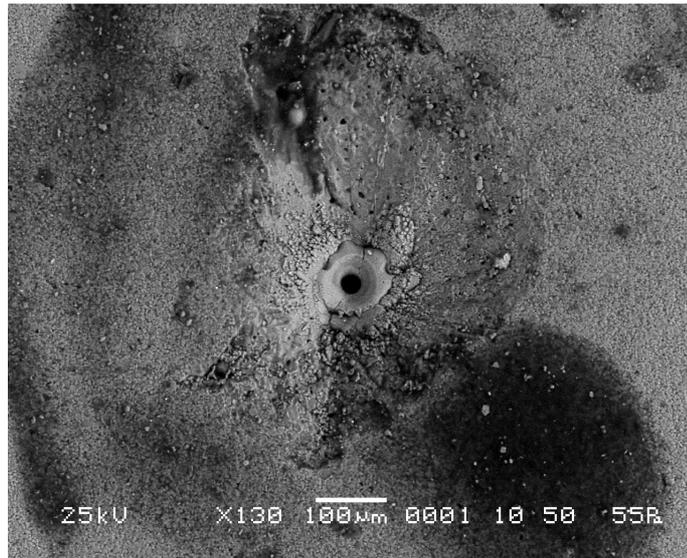
La différence entre l'alumine monocristalline et l'alumine polycristalline réside dans la microstructure. Contrairement à l'alumine monocristalline, l'alumine polycristalline présente une structure granulaire où les grains sont liés les uns aux autres par les joints de grain. L'amélioration de la rigidité diélectrique peut donc être liée à la présence de joints de grains. Cette déduction est en cohérence avec les mesures des courants de conduction exposées dans le chapitre précédent. En effet, ces mesures ont montré que les joints de grains peuvent constituer des pièges aux porteurs de charge et limitent par conséquent la conduction électrique. L'inexistence de joints de grains conduit à la diminution considérable de la densité des pièges peu profonds, ce qui favorise la conduction et anticipe alors le mécanisme de claquage diélectrique. Il faut signaler au passage que la densité de piège profond (défaut de Schottky et Frenkel) dans l'alumine est très faible [LAG 98].

### **III.3.5. Observation post rupture**

Les échantillons ayant subi le claquage diélectrique ont été analysés à l'aide d'un microscope optique et le microscope à balayage électronique afin d'observer la nature de l'impact de l'application d'une rampe de tension jusqu'à la rupture ainsi que la morphologie de rupture diélectrique.

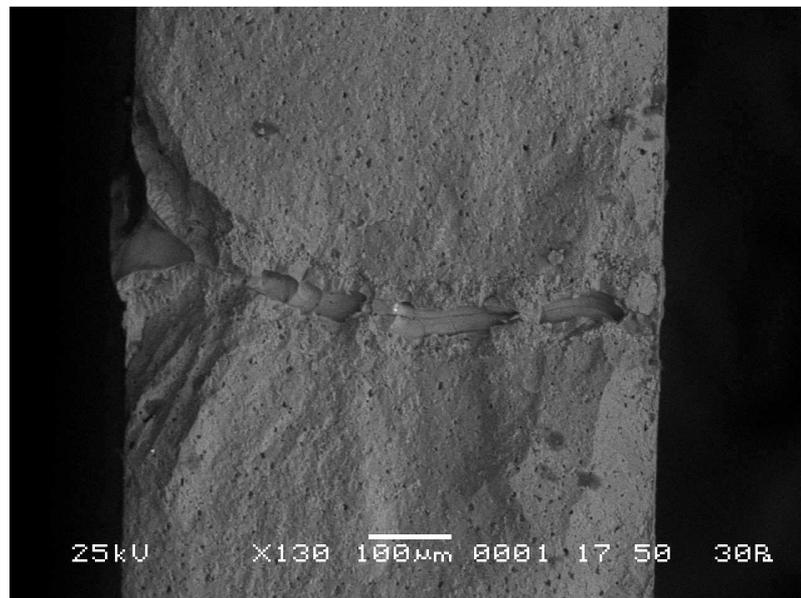
Comme cela a été rapporté par d'autres auteurs concernant la rupture diélectrique des céramiques en générale [VOR 05, OWA 92a, OWA 92b] et de l'alumine en particulier, nos premières observations [MAL 05] révèlent la présence d'un cratère sur l'une des surfaces de chaque échantillon (micrographie III.2).

Par ailleurs, nous constatons que le cratère est toujours localisé sur la surface en contact avec l'électrode pointe. Nous avons effectué des tests de rupture sous les mêmes conditions mais en remplaçant l'électrode pointe par une électrode plane. L'observation des échantillons claqués a montré que la probabilité de localiser le cratère sur l'une ou l'autre surface est pratiquement la même. En effet, en configuration plan-plan le champ électrique dans le matériau n'étant pas perturbé par une différence de géométrie entre les deux électrodes, la surface en contact avec l'électrode de part et d'autre de l'échantillon est la même. Par conséquent, l'intensification susceptible d'être introduite uniquement par les défauts est la même sur les deux surfaces, le cratère peut alors survenir sur l'une ou l'autre surface. Par contre en configuration sphère-plan, la présence de l'électrode sphère introduit une intensification importante et dominante. C'est pourquoi, dans ce cas, le cratère survient toujours sur la surface en contact avec l'électrode sphère.



**Micrographie III.2 :** Vue par le MEB du cratère induit par le claquage électrique à la surface d'un échantillon d'alumine.

Pour voir la manifestation de la rupture diélectrique en volume, nous avons effectué une prise de vue par le MEB d'une coupe sur des échantillons claqués. Nous remarquons que le cratère est relié à la surface opposé par un canal irrégulier (micrographie III.3).



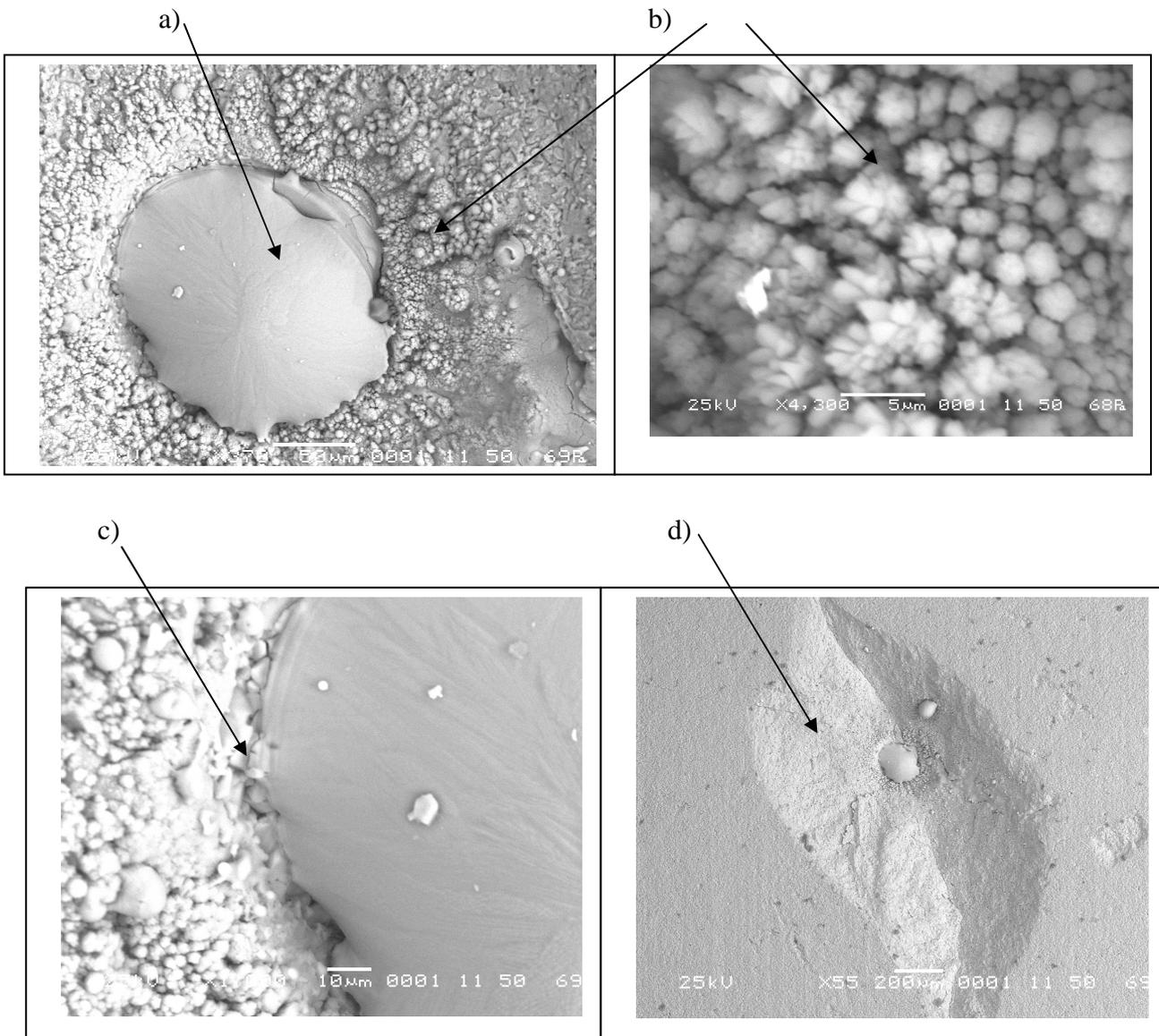
**Micrographie III.3 :** Vue par le MEB du canal induit par le claquage électrique en volume dans un échantillon d'alumine.

Un agrandissement de l'image du cratère nous conduit à des informations pertinentes sur la morphologie de la surface du cratère ainsi que sa nature. D'après les micrographies III.4 nous constatons qu'on peut diviser ce domaine de surface en trois zones :

La première zone donnée par la micrographie III.4.a correspond à l'embouchure, elle montre que la structure granulaire de l'alumine a disparu et remplacé par de la matière solidifiée preuve qu'à cet endroit la température de fusion de l'alumine a été atteinte.

La deuxième zone donnée par micrographie III.4.b est adjacente à la première zone (micrographie III.4.c). On arrive à distinguer les grains même s'ils sont déformés. La matière n'est pas complètement fondue.

Dans la troisième zone, la matière semble être intacte, on peut distinguer parfaitement la structure granulaire (micrographie III.4.d).



**Micrographie III.4 :** Morphologie de la surface du cratère. a) Embouchure correspondant à de la matière fondue solidifié. b) zone juxtaposant et entourant la zone a. c) Zone frontière entre la zone a et la zone b. d) La zone intact du cratère

#### IV. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté les résultats de l'étude de la rupture diélectrique « claquage diélectrique » en alternatif à 50 Hz de différents types d'échantillons d' $\text{Al}_2\text{O}_3$ . L'étude a été faite en fonctions de différents paramètres : épaisseur (254  $\mu\text{m}$  à 2.5 mm ), vitesse de montée en tension (de 0,6 à 20 kV/s) et de degré de pureté du matériau (92%, 96% et 99%). L'analyse des résultats avec la statistique de Weibull montre une diminution du champ de claquage  $E_C$  avec l'épaisseur, une variation négligeable de ce dernier avec la vitesse de montée et enfin une augmentation de  $E_C$  avec la pureté. Par ailleurs l'ensemble des caractérisations physiques et chimiques des différents types d'échantillons nous ont permis de faire un lien entre la rigidité diélectrique des échantillons d'alumine, la composition ainsi que la structure du matériau qui dépendent principalement de leurs procédés de fabrication. Ainsi, l'inexistence des joints de grains qui servent de pièges aux porteurs de charge anticipe le mécanisme de dégradation de l'alumine.

L'observation des échantillons claqués au microscope, montre pour chacun d'entre eux la présence d'un canal se terminant par un cratère sur la surface en contact avec l'électrode sphère. La zone de rencontre du canal et du cratère (fond du cratère) présente de la matière fondue solidifié. Dans les zones éloignées entourant le fond du cratère, les grains de la surface du cratère semblent être intacts.

# **Chapitre IV : Etude du processus de rupture diélectrique dans l'alumine**

Ce chapitre est essentiellement consacré à l'étude du processus de rupture diélectrique dans les céramiques et en particulier dans l'alumine. Une synthèse des processus de claquage diélectrique connus dans la littérature a été effectuée et leurs caractéristiques respectives ont été confrontées à celles trouvées dans le claquage des céramiques à base d'alumine. En se référant aux résultats expérimentaux exposés dans les chapitres précédents (la conductivité diélectrique, variation de la rigidité diélectrique,..) et aux observations optiques et au MEB d'une part et aux caractéristiques des différents modèles de mécanismes de claquage diélectrique de l'autre, nous avons proposé un mécanisme de claquage diélectrique d'origine mécanique. Pour consolider notre hypothèse, en premier lieu une simulation dans laquelle l'environnement des tests de claquage est reproduit a été entreprise. La configuration d'électrode, l'épaisseur d'échantillons, la tension de claquage sont autant de facteurs pris en compte dans la simulation. En second lieu, l'élaboration d'échantillons d'alumine et alumine/zircone a été menée.

#### **IV.1. Mécanismes de rupture diélectrique dans les isolants solides**

Le claquage par définition est l'aboutissement d'une série de processus complexes et interactifs à la perte des propriétés diélectriques des isolants, mais généralement un des mécanismes prédomine. Il peut se traduire par une destruction et fusion locale du matériau.

Beaucoup d'études sur le phénomène de claquage diélectrique ont été menées depuis plusieurs décennies. On distingue dans la littérature le mécanisme de claquage électronique, le mécanisme de claquage thermique et le mécanisme de claquage d'origine mécanique.

On associe au mécanisme de claquage électronique deux grandes classes de théories. La première est due essentiellement à Von Hippel [VON 37]. Il a été le premier à avoir interprété le claquage diélectrique dans les monocristaux d'halogénures alcalins par un processus électronique. Ces théories de claquage électronique intrinsèque sont basées sur le concept de l'équilibre entre l'énergie fournie aux électrons par l'application d'un champ électrique et l'énergie transférée par ces mêmes électrons au réseau cristallin. Elles font intervenir d'une part la distribution énergétique des électrons de conduction et du processus de transfert et d'autre part la nature des interactions électrons- réseau. Cependant, dans plusieurs matériaux, excepté pour les monocristaux d'halogénures alcalins, les résultats expérimentaux et ceux fournis par ces théories ne coïncident pas. Dans la deuxième classe on distingue la théorie d'avalanche développée plus tard par Seitz [SEI 49]. Ce dernier considéra

qu'un électron injecté de la cathode causant une avalanche d'électron est capable de détruire le matériau.

Parallèlement, pour expliquer le rôle primordial de la température dans la rupture diélectrique, plusieurs théories ont été formulées, la plus connue est celle de Wagner. Elle est basée sur l'équilibre entre l'échauffement du matériau par conduction électrique et la dissipation de la chaleur grâce à la conduction thermique [MAL 02]. Le claquage survient quand l'équilibre est rompu.

D'autres théories pour expliquer le mécanisme de rupture diélectrique d'un point de vue mécanique ont été formulées. Ce processus de rupture est appelé claquage électromécanique, il est dû essentiellement à Stark et Garton [STA 55]. Il prend en compte la déformation mécanique causée par la contrainte de Maxwell induite par l'application d'un champ électrique. Plus tard Zeller [ZEL 84a] a formulé un mécanisme de rupture diélectrique par analogie avec la théorie de la rupture mécanique des matériaux fragiles.

#### **IV.1.1. Mécanisme de claquage électronique**

Dans le mécanisme de claquage électronique ce sont les électrons présents à l'application du champ électrique qui sont responsables de la destruction du matériau. Le processus électronique peut être considéré d'un point de vue énergétique ou d'un point de vue multiplication électronique. On peut distinguer alors plusieurs théories de claquage dans le domaine de rupture d'origine électronique.

##### **IV.1.1.1. Claquage intrinsèque**

Comme il a été mentionné précédemment, ce mécanisme fait intervenir l'équilibre énergétique des électrons. Sous l'effet d'un champ électrique  $E$  induisant un courant de densité  $j$ , l'énergie gagnée par les électrons par unité de temps autrement dit la vitesse du gain en énergie  $A$  est [HIK 82] :

$$A = jE \quad \text{IV.1}$$

Soit  $B$  l'énergie transférée par unité de temps (vitesse de perte en énergie) au réseau par les électrons de conduction, la condition d'équilibre énergétique s'écrit :

$$A = B \quad \text{IV.2}$$

Ce type de claquage survient lorsque l'équilibre entre l'énergie fournie  $A$  et l'énergie transférée au réseau  $B$  est rompue ( $A > B$ ). On peut distinguer plusieurs interprétations du

mécanisme de claquage intrinsèque en fonction de la distribution en énergie des électrons et les mécanismes de son transfert au réseau.

- **Critère de basse énergie de Von Hippel et critère de haute énergie de Frolich**

En remplaçant  $j = e^2\tau(W)/m^* E$  dans l'équation IV.1, la vitesse du gain en énergie devient :

$$A(E, W, T_0) = \frac{e^2 E^2 \tau(W)}{m^*} \quad \text{IV.3}$$

$W$  est l'énergie d'un électron de charge  $e$ ,  $T_0$  la température électronique et  $\tau$  la durée moyenne entre deux collisions.

La vitesse de perte en énergie due aux chocs inélastiques entre un électron et le réseau est donné par :

$$B(W, T_0) = \frac{hv}{\tau(W)} \quad \text{IV.4}$$

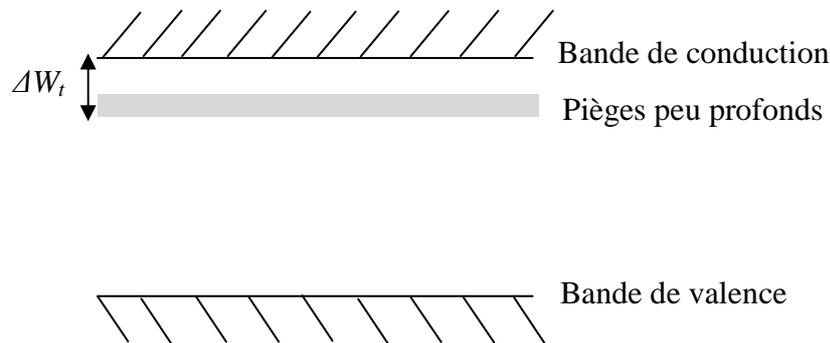
Où  $hv$  est l'énergie d'un phonon optique.

Le critère de basse énergie développé par Von Hippel stipule que le claquage se produit lorsque l'énergie gagnée par chaque électron dépasse le maximum de perte avec le réseau. Selon ce critère, le processus de perte se produit uniquement par interaction électron-phonon.

Par contre le critère de haute énergie de Frolich suggère que la condition nécessaire pour que le claquage intrinsèque survient est qu'un nombre suffisant d'électrons acquièrent l'énergie d'ionisation de telle manière que  $A \geq B$ . Dans ce cas, la situation critique survient dès que le processus d'ionisations par les électrons de haute énergie ne peut plus être compensé par les processus de recombinaison.

- **Modèle de Frolich pour les matériaux amorphes**

Pour les matériaux amorphes, Frolich [FRO 39] a proposé une interprétation selon laquelle les électrons piégés dans des pièges peu profonds, situés à un niveau  $\Delta W_t$  de la bande de conduction (Figure IV.1), interagissent avec les électrons de la bande de conduction. Pour calculer l'énergie transférée, il est donc important de ne pas considérer uniquement les électrons de conduction mais également les électrons piégés dans les niveaux énergétiques des états localisés dus aux imperfections du réseau.



**Figure IV.1** : Niveaux d'énergie d'un solide amorphe.

Quand un champ électrique est appliqué, l'énergie gagnée par les électrons est directement transférée aux électrons des états localisés les conduisant ainsi à des états localisés excités. D'autre part, l'énergie transférée au réseau est caractérisée par émission de photons par les électrons excités. La situation critique traduite par  $A \geq B$  correspond au cas où la stabilité électronique est rendue impossible. Le champ de rupture est donnée par :

$$E_c = C \exp\left(\frac{\Delta W_t}{2k_B T}\right) \quad \text{IV.5}$$

où  $C$  est pratiquement constant

Mis à part pour les halogénures alcalins, ces théories n'ont fourni qu'une interprétation qualitative du claquage diélectrique. Elles prédisent un champ de rupture indépendant de l'épaisseur, la nature des électrodes et de la forme de la tension appliquée.

#### IV.1.1.2. Claquage par avalanche

Ce mécanisme est caractérisé par la multiplication d'électrons de conduction qui, au fur et à mesure que le champ électrique augmente, prend des proportions catastrophiques. On distingue différentes théories de claquage par avalanche qui font intervenir différents mécanismes d'initiation. La plus connue est la théorie de rupture par collision ionisante

- **Mécanisme de rupture par collision ionisante**

Seitz a estimé que certains électrons peuvent surmonter l'énergie perdue  $B$  à cause de l'existence des fluctuations dans la distribution des électrons et sont accélérés pour atteindre

l'énergie d'ionisation permettant ainsi la libération d'électrons qui à leur tour libéreront d'autres électrons. Le concept de cette théorie est qu'un électron provenant de la cathode va déclencher une avalanche d'électrons par collision avant d'atteindre l'anode. Le claquage se produit lorsque l'énergie totale de l'avalanche dépasse l'énergie nécessaire pour la destruction locale du matériau.

De ce fait, chaque ionisation produit deux électrons, une avalanche de  $m$  génération produit  $2^m$  électrons. Seitz estime que la destruction du matériau nécessite 40 générations, ce qui correspond à  $10^{12}$  électrons (en effet :  $2^{40} \approx 10^{12}$ ) [COE 93].

Si on tient compte du fait que pour un champ supérieur au seuil, une collision ionisante est précédé de  $n(E)$  collisions avec les phonons et si on considère  $\lambda = w_{ph}/eE$  la distance moyenne parcourue par l'électron dans la direction du champ  $E$  entre deux interactions avec phonons, le critère des 40 générations s'écrit :

$$d = \frac{40}{eE} [I + n(E)w_{ph}] \quad \text{IV.6}$$

où

$d$  représente l'épaisseur du matériau,  $I$  l'énergie d'ionisation en absence d'interactions avec les phonons, et  $w_{ph}$  l'énergie du phonon.

Il faut noter que pour deux épaisseur  $d_1 > d_2$  correspondent deux champs tel que  $E_2 > E_1$ , autrement dit le champ électrique de rupture diminue quand l'épaisseur de l'échantillon augmente.

- **Rupture par émission de champ**

Dans les matériaux dont le libre parcours moyen est petit tel que les matériaux amorphes ou les matériaux de faible épaisseur, sous l'effet d'un champ électrique élevé un grand nombre d'électron est émis de l'électrode métallique ou de la bande de valence à la bande de conduction par effet tunnel. L'apport de l'énergie causée par émission tunnel des électrons est responsable du claquage diélectrique du matériau.

Dans ce modèle, le champ de claquage est à peine influencé par la température ou l'épaisseur du matériau.

### IV.1.2. Mécanisme de claquage thermique

Dans beaucoup de matériaux diélectriques il a été remarqué que le claquage survient prématurément quand la température augmente. Pour expliquer le phénomène, Wagner a introduit l'idée que la rupture diélectrique peut être traitée comme un problème d'équilibre entre la chaleur induite par la conduction électrique et la dissipation thermique [MAL 02].

En effet, lorsqu'on applique un champ électrique à un matériau isolant un courant léger circule dans le matériau entraînant l'échauffement de ce dernier. Par la suite, la température s'élevant, le courant augmente à son tour, etc. Le taux de transfert de l'énergie due à l'application d'un champ électrique au matériau est :

$$A = \sigma E^2 \quad \text{IV.7}$$

où  $\sigma$  représente la conductivité électrique

Cet échauffement doit être compensé par évacuation thermique grâce à la conduction thermique. Dans le cas contraire, le processus peut conduire à un emballement thermique conduisant à la destruction du matériau.

L'équilibre entre l'énergie gagnée  $A$  et l'énergie perdue par évacuation thermique est traduit par l'équation :

$$\sigma E^2 = c_v \frac{dT}{dt} - \text{div.} [K \text{ grad } T] \quad \text{IV.8}$$

Avec  $c_v$  la capacité thermique massique à volume constant (chaleur spécifique par unité de volume),  $T$  la température,  $K$  conductivité thermique et  $t$  le temps.

Le premier terme du second membre  $c_v dT/dt$  représente l'élévation de la température et le deuxième  $\text{div}(K \text{ grad } T)$  exprime l'évacuation thermique

Le claquage thermique peut prendre deux formes, la première est obtenue par élévation de la température jusqu'à la température critique ce qui correspond à un claquage thermique en régime impulsif. Dans ce cas l'équation d'équilibre thermique est un cas particulier de l'équation précédente où le terme de l'évacuation thermique est ignoré :

$$\sigma E^2 = c_v \frac{dT}{dt} \quad \text{IV.9}$$

La seconde forme correspond à une variation lente du champ électrique, par conséquent la température du réseau reste toujours stable et  $\frac{dT}{dt} = 0$ . Cela correspond à l'établissement du régime permanent. L'équation précédente devient alors :

$$\sigma E^2 = -\text{div.}[K \text{ grad } T] \quad \text{IV.10}$$

Les principales caractéristiques du claquage thermique sont :

- Le claquage thermique est observé pour des durées de pulsation de  $10^{-6}$ s en dc.
- Le champ de claquage thermique diminue avec la température, l'épaisseur (dans cas du régime permanent) , la durée de pulsation et les pertes diélectriques.
- Le champ électrique augmente avec la résistivité et la conductance thermique du matériau.

### IV.1.3. Mécanisme de claquage électromécanique

L'existence d'une différence de potentiel aux bornes d'un échantillon provoque l'apparition de forces de compressions dues à l'attraction des deux électrodes. Cette contrainte provoque une diminution de l'épaisseur  $d$ .

A l'équilibre cette compression d'origine électrique  $P_e$  est compensée par une contrainte mécanique interne  $P_m$ .

Dans le cas des petites déformations (la réduction de l'épaisseur est inférieure à 10%), cette contrainte mécanique est reliée à la variation de l'épaisseur selon la loi de Hooke :

$$P_m = Y \ln \left( \frac{d_0}{d} \right) \quad \text{IV.11}$$

Où  $Y$  est le module de Young et  $d_0$  est l'épaisseur initiale

Quant à la contrainte d'origine électrique, elle est assimilée à la contrainte de Maxwell dans sa forme la plus simple

$$P_e = \frac{1}{2} \epsilon_0 \epsilon_r \left(\frac{V}{d}\right)^2 \quad \text{IV.12}$$

Où  $\epsilon_0$  et  $\epsilon_r$  sont respectivement la permittivité du vide et la permittivité relative du diélectrique.

L'équilibre entre les deux contraintes est traduit par l'égalité :

$$\frac{1}{2} \epsilon_0 \epsilon_r \left(\frac{V}{d}\right)^2 = Y \ln \frac{d_0}{d} \quad \text{IV.13}$$

La quantité  $d^2 \ln(d_0/d)$  possède un maximum pour  $d/d_0 = \exp(-1/2) = 0.606$  autrement dit pour  $d = d_c = 0.606 d_0$ . Pour cette valeur critique de l'épaisseur correspond un champ de rupture critique :

$$E_c = 0,606(Y/\epsilon)^{1/2} \quad \text{IV.14}$$

Le champ électrique de rupture d'origine électromécanique diminue quand la température augmente car le module de Young a tendance à diminuer quand la température augmente.

D'autres modèles de rupture diélectrique d'origine mécanique ont été aussi proposés, parmi eux, le modèle de Zeller [ZEL 84b, ZEL 87]. Ce dernier a proposé un modèle en analogie avec la théorie de rupture mécanique de Griffith basé sur la création de nouvelles surfaces. D'après Zeller, tout comme la rupture mécanique [LAW 93], la rupture diélectrique nécessite une énergie de formation pour la création du canal de rupture (fissure dans le cas de la rupture mécanique).

Selon la théorie de l'élasticité, un matériau soumis à une contrainte mécanique uniaxiale, possède une densité d'énergie de déformation  $0,5\sigma\epsilon = \sigma^2/2Y$  où  $\sigma$  et  $\epsilon$  sont la contrainte mécanique et la déformation respectivement. Le critère de Griffith stipule que pour qu'une fissure se propage, l'énergie de surface nécessaire pour cela doit être inférieure à l'énergie de déformation libérée.

Dans le modèle d'électrofracture de Zeller, le même concept est appliqué. Le champ électrique au front de la rupture induit une augmentation de la densité d'énergie électrostatique  $0,5ED = 0,5\epsilon_0\epsilon_0 E^2$  qui est libérée au cours de la propagation de la rupture.

L'initiation de la propagation du canal de rupture n'est possible que si l'énergie électrostatique  $W_{es}$  est supérieure à l'énergie de formation de surfaces  $W_f$ , cette condition est traduite par l'inégalité :

$$\frac{\partial W_{es}}{\partial x} \geq \frac{\partial W_f}{\partial x} \quad \text{IV. 15}$$

Avec

$$\partial W_{es} = 0,5 \varepsilon_0 \varepsilon_r E^2 \pi r^2 \delta x \quad \text{IV. 15. a}$$

est l'énergie électrostatique libérée quand une rupture de rayon  $r$  se propage d'une distance  $\delta x$ .

et

$$\partial W_f = (2\pi r \gamma + \pi r^2 \sigma_y) \delta x \quad \text{IV. 15. b}$$

où  $\gamma$  représente l'énergie de surface,  $\sigma_y$ , la limite élastique, comprend l'énergie nécessaire pour créer cette surface et l'énergie de déformation plastique correspondante. Dans le cas où cette dernière est beaucoup plus importante que l'énergie de formation de surface (comme pour les polymères) le champ critique de rupture est alors donné par:

$$E_c = \left( \frac{2\sigma_y}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} \right)^{1/2} \quad \text{IV. 16}$$

Les principales caractéristiques du champ de claquage diélectrique pour chaque mécanisme de rupture diélectrique sont résumées dans le tableau IV.1. Pour chaque mécanisme est définie la variation du champ de rupture en fonction de l'épaisseur et de la température. En plus de l'épaisseur et de la température, d'autres facteurs telles que la nature de l'électrode, vitesse de montée en tension,... peuvent être pris en compte pour chaque modèle.

Origine électronique



Modèles	Intrinsèque	Avalanche e <sup>-</sup>	Emission de E	thermique	Electromécanique
$\partial E/\partial d$	=0	<0	=0	<0 =0	<0
$\partial E/\partial T$	<0 >0	>0	=0	<0	<0

**Tableau IV.1 :** Modèle de mécanisme de claquage diélectrique et leurs principales caractéristiques.

## IV.2. Synthèse des travaux effectués sur l'origine de la rupture diélectrique dans les céramiques

De nombreuses études ont été menées afin de comprendre l'origine de claquage diélectrique dans les isolants solides, spécialement les polymères tels que le polyéthylène. L'ensemble de ces études tendent à confirmer l'origine thermique de claquage de ces matériaux même si l'aspect mécanique intervient dans ce processus [MAL 02]. Concernant les céramiques, les études, bien qu'elles soient peu nombreuses comparées aux polymères, révèlent de différentes interprétations du mécanisme de claquage dans ces matériaux. Les partisans du claquage d'origine mécanique fondent leur modèle sur la base de la comparaison entre les caractéristiques de la rupture mécanique et la rupture diélectrique. Ainsi Freiman et Pohanka [FRE 89] ont mis en avance la relation existante entre les défauts initiateurs de la rupture sous l'effet d'une contrainte mécanique et la rupture diélectrique dans les matériaux fragiles. Partant du même principe, McMeeking [MCM 87] a assimilé ce défaut à un défaut conducteur elliptique causant une intensification du champ électrique à son extrémité. Il a développé un critère de claquage diélectrique en analogie avec celui de la rupture mécanique

qui stipule que la rupture survient lorsque le facteur d'intensité de contrainte  $K_1$  à l'extrémité du défaut atteint la ténacité du matériau ( $K_{1C}$ ). Le facteur d'intensité de contrainte quantifie l'intensification du champ des contraintes au voisinage d'un défaut sous une sollicitation extérieure et la ténacité caractérise la capacité d'un matériau à résister à une rupture brutale.

Dans le cas où la contrainte appliquée est de nature électrique, le facteur d'intensité de contrainte à l'extrémité du défaut elliptique déterminé par McMeeking est de la forme :

$$K_1 \approx \sqrt{(\varepsilon G a / (1 - \nu))} E \quad \text{IV.17}$$

Avec  $\varepsilon$  est la constante diélectrique du matériau,  $G$  le module de cisaillement et  $\nu$  le coefficient de poisson,  $a$  est la dimension du défaut elliptique.

Le champ critique est obtenu pour  $K_1 = K_{1C}$  et vaut alors :

$$E_r = \frac{1}{S_E} \sqrt{\frac{1 - \nu}{\varepsilon G a}} K_{1C} \quad \text{IV.18}$$

$S_E$  est un coefficient géométrique

Par ailleurs Yoshimura et Bowen [YOS 81] ont expliqué le changement de comportement de la rigidité diélectrique dans la gamme de température  $T_{\text{ambiante}}$  à  $1400^\circ\text{C}$  par un changement du mécanisme de claquage diélectrique. Il apparait d'après ces auteurs que jusqu'à  $900^\circ\text{C}$ , le mécanisme de rupture dans cette gamme de température est celui du claquage par avalanche. Tandis que pour des températures supérieures à  $900^\circ\text{C}$ , le mécanisme de claquage d'origine thermique prend place. Owate et son équipe [OWA 92b] ont avancé un processus de claquage basé essentiellement sur un mécanisme d'origine électronique pendant le stade de l'initiation de la rupture en se référant au fait que la rigidité diélectrique de l'alumine est indépendante de la vitesse de montée en tension bien que la plage des vitesses considérées (0,5–2,8 kV/s) reste assez réduite.

### IV.3. Proposition d'un mécanisme de rupture diélectrique

L'analyse des résultats expérimentaux et des observations au MEB obtenus jusqu'à présent nous amènent à proposer un mécanisme de rupture diélectrique d'origine mécanique.

En se référant au tableau IV.1 d'une part et aux résultats expérimentaux de l'alumine de l'autre, on se trouve confronté à priori à deux modèles possibles de claquage diélectrique dans l'alumine : le premier d'origine thermique et le deuxième d'origine électromécanique. En effet les prévisions théoriques de ces deux modèles,  $\partial E/\partial d < 0$  et  $\partial E/\partial T < 0$ , sont en cohérence avec les résultats expérimentaux de la variation du champ électrique en fonction de l'épaisseur et de la température. Les caractéristiques du claquage de l'alumine déduit de nos mesures sont reportées sur le tableau IV.2. Notons que les travaux de Yoshimura et al. ont montré une diminution du champ électrique de rupture en fonction de la température ( $\partial E/dT < 0$ ).

Différents paramètres	Sens de variation
Dépendance en épaisseur	$\partial E/\partial d < 0$
Dépendance en montée en tension	$\partial E/\partial(dV/dt) > 0$
L'effet de la prépolarisation sur le claquage	pas d'effet
Effet de la polarité	pas d'effet

**Tableau IV.2** : Caractéristiques du champ de claquage diélectrique de l'alumine

Le processus de claquage d'origine électronique est à écarter. En effet, contrairement aux résultats trouvés par Owate concernant l'évolution du champ de rupture en fonction de la montée en tension, nos résultats effectués sur une plage de montée en tension plus large (chapitre III) ont montré que la rigidité diélectrique dépend de la vitesse de montée en tension.

Le claquage thermique dans l'alumine reste peu probable en raison de la température de fusion élevée qui avoisine les 2050 °C dans ces matériaux et de l'incompatibilité selon la théorie de claquage thermique des mesures de conduction exposé dans le chapitre II avec les

mesures de la rigidité diélectrique (chapitre III). En effet, selon la théorie du mécanisme de claquage thermique décrite par l'équation IV.8, la variation du champ électrique critique de l'alumine en fonction de sa pureté (96% et 99,5%) n'est possible que si sa conductivité électrique varie. Or, nos mesures montrent que la conductivité électrique de l'alumine ( $d=635\mu\text{m}$ ) reste inchangée par rapport à la pureté de l'alumine alors que sa rigidité diélectrique augmente de 20% avec la pureté.

Dans le claquage d'origine mécanique qui reste donc le plus probable on distingue le modèle électromécanique de Garton et Stark, le modèle thermomécanique et le modèle de Zeller. La formule (équation IV.14) donnant le champ électrique de rupture dans le modèle de Stark et Garton donne une valeur du champ de claquage théorique ( $11,8 \times 10^4$  kV/mm) très éloignée de la valeur expérimentale (16~18 kV/mm) pour une épaisseur de 1,016 mm, à peu près  $10^4$  fois la valeur expérimentale.

#### **IV.4. Corrélation entre la formation du cratère et le processus de claquage diélectrique**

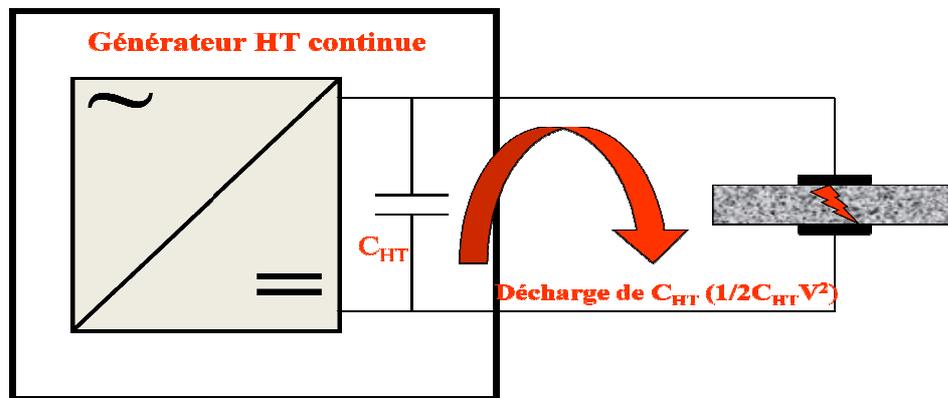
L'un des aspects souvent rencontré dans le claquage diélectrique des céramiques est l'apparition d'un cratère principal sur la surface de l'échantillon. Certains auteurs [OWA 92a, OWA 92b] estiment que ce cratère apparaît au stade final de la rupture comme une conséquence de la rupture diélectrique causée par l'arc électrique. Selon ces derniers, le cratère doit donc présenter de la matière fondue ce qui n'est pas le cas dans nos observations. En effet, à part l'embouchure qui présente de la matière fondue solidifiée, les autres zones présentent de la matière pratiquement intacte, et les quelques traces de matière fondue (solidifiée) provient de l'éjection sur les parois du cratère de la matière fondue à partir de l'embouchure sous l'effet de la température et la pression élevées à l'intérieure de l'embouchure.

Afin de déterminer l'impact de l'énergie délivrée par le générateur haute tension sur la formation du cratère, une résistance très élevée a été introduite dans le circuit représenté sur la figure IV.2. Le courant circulant ainsi que la puissance délivrée se trouvent alors très réduits au moment du claquage des échantillons et les observations des échantillons ayant subi la rupture diélectrique dans ce cas de figure montrent toujours la présence du cratère. Ce dernier n'est donc pas dû à une libération d'énergie provenant du générateur haute tension pendant la rupture. L'effet capacitif du matériau isolant à la rupture qui se traduit par une décharge avec

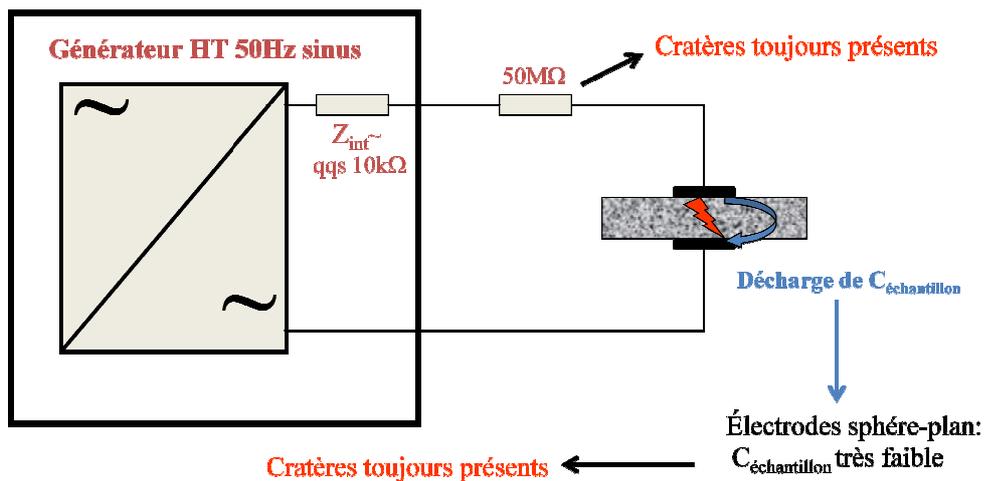
une énergie de  $1/2C_{\text{éch}}V^2$  et pouvant conduire ainsi à la formation du cratère est à éliminer. En effet, en réduisant l'effet de la décharge de la capacité de l'échantillon par le remplacement du système d'électrode plan/plan par un système d'électrode pointe/plan nous avons remarqué toujours la présence d'un cratère sur les échantillons claqués.

Nous pouvons conclure alors que le cratère n'est pas une conséquence du claquage qui survient en post-rupture mais il est associé au processus de claquage diélectrique et donc ses dimensions sont susceptibles d'évoluer avec la rigidité diélectrique.

A)



B)



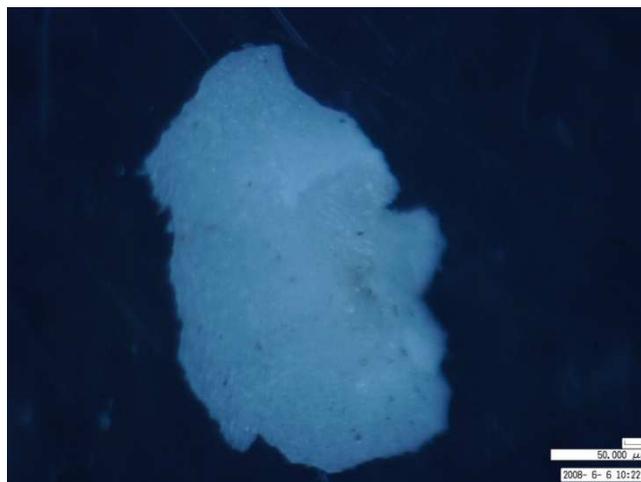
**Figure IV.2 :** Générateur haute tension de rupture diélectrique. A) circuit en tension continue. B) générateur haute tension alternative avec une grande résistance en série.

Par ailleurs, nous avons constaté au fur et à mesure que nous effectuons des tests de rupture l'apparition de plus en plus de petites particules blanches au fond de la cellule de mesure (Figure IV.3.A). L'examen de ces particules montre qu'il s'agissait de la matière d'alumine éjectée de la surface de l'alumine à la rupture diélectrique et leurs dimensions correspondent parfaitement à celles des cratères formés. L'image illustrée sur la figure IV.1.B montre une de ces particules prise à l'aide d'un microscope optique. Elle ne présente aucun canal de rupture mais elle présente une dispersion d'éléments de l'acier inoxydable qui proviennent de l'électrode. Par conséquent, ces observations montrent que les cratères formés sont dues à l'arrachement de la matière de la surface d'alumine conduisant ainsi à la formation du canal de rupture. En effet, micrographie IV.1 prise à l'aide du MEB montre l'orientation de la propagation des fissures sur la surface de l'alumine qui sont responsables de l'arrachement de matière à cet endroit.

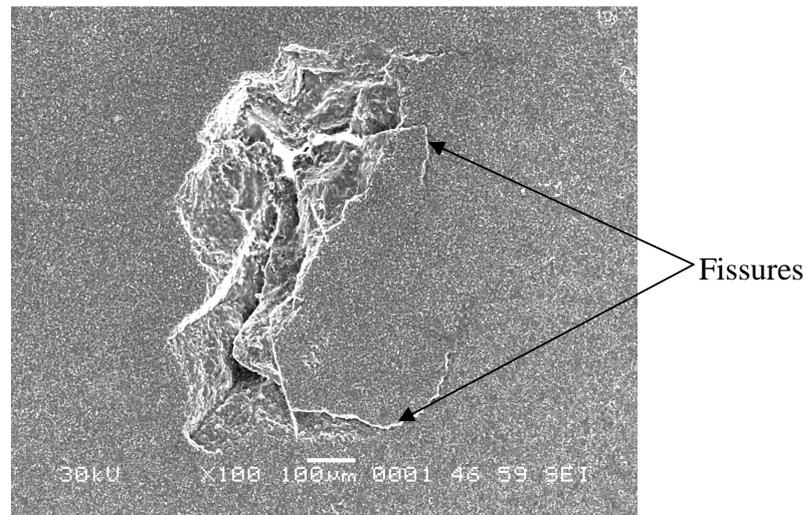
A



B

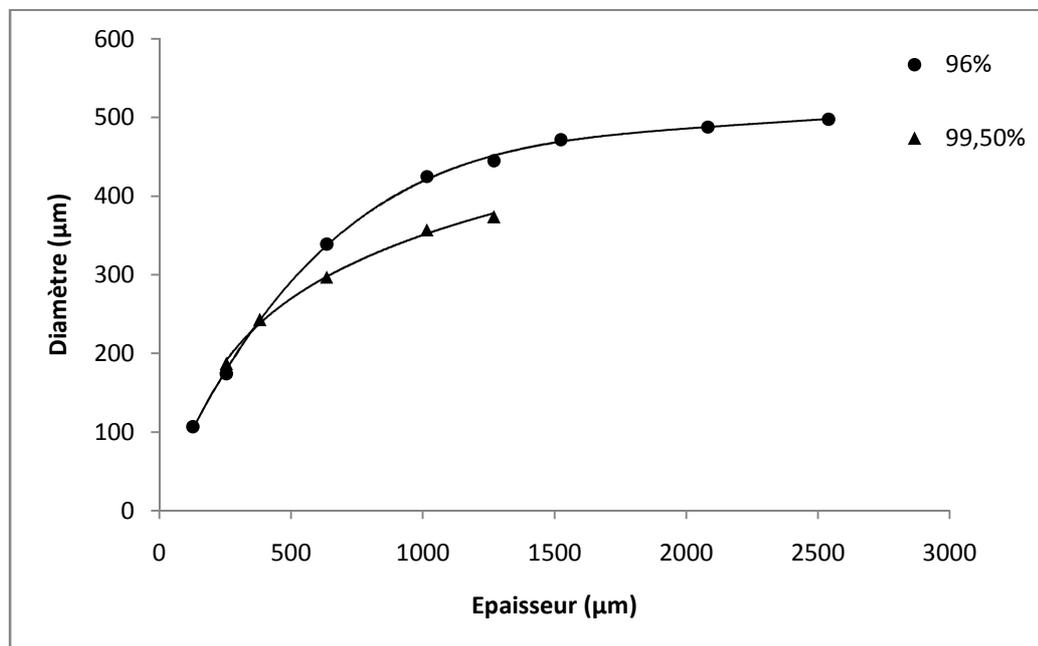


**Figure IV.3** : Matière éjectée à la rupture diélectrique. A) au fond de la cellule de rupture. B) Vue de l'une des particules correspondant au cratère au microscope optique.



**Micrographie IV.1 :** Fissures conduisant à l'arrachement du cône de matière.

La moyenne des diamètres des cratères a été mesurée avec un microscope optique munie d'une échelle graduée pour chaque épaisseur. Les résultats trouvés sont reportés sur la figure IV.4.



**Figure IV.4 :** Evolution du diamètre du cratère en fonction de l'épaisseur

Cette figure montre que le diamètre du cratère a tendance à augmenter quand l'épaisseur augmente autrement dit quand la rigidité diélectrique diminue. Plus donc la tension nécessaire au claquage des échantillons est élevée plus la dimension du cratère est importante.

Par ailleurs, elle montre aussi que pour une épaisseur donnée, le diamètre diminue quand la pureté augmente ce qui est en accord avec la courbe qui donne la variation de la rigidité diélectrique en fonction de la pureté (figure III.10). En effet, d'une part la rigidité diélectrique augmente avec la pureté et de l'autre l'augmentation de la rigidité diélectrique correspond à une décroissance du diamètre du cratère.

#### IV.5. Simulation de la distribution du champ électrique et estimation de l'énergie électrique

La détermination de la distribution du champ électrique ainsi que d'autres grandeurs au sein du matériau alumine est réalisée grâce au logiciel Comsol connu aussi sous le nom FEMLab. Ce logiciel est un outil de résolution d'équation aux dérivées partielles par la méthode d'éléments finis. Sa base de données à différentes équations permet de modéliser différents phénomènes tel que l'électrostatique.

La détermination du champ électrique dans un matériau quelconque passe par la résolution de l'équation de Poisson. En électrostatique, la première loi de Maxwell ou loi de Gauss dans le cas d'un matériau isotrope est donnée par :

$$\text{Div } \mathbf{E} = \frac{\rho}{\varepsilon} \quad \text{IV.19}$$

Si nous exprimons cette équation en fonction du potentiel électrique, sachant que :

$$\mathbf{E} = -\mathbf{grad } V \quad \text{IV.20}$$

nous obtiendrons l'équation de Poisson suivante :

$$\Delta V = -\frac{\rho}{\varepsilon} \quad \text{IV.21}$$

Dans notre étude, la résolution de l'équation est effectuée dans un système de coordonnées cylindriques (r,θ,z). En absence de charge l'équation devient alors :

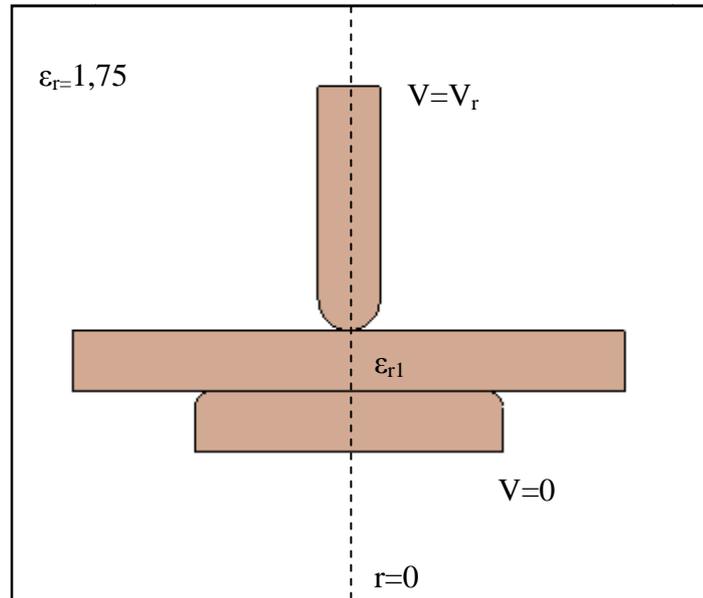
$$\frac{\partial^2 V(r, \theta, z)}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial V(r, \theta, z)}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 V(r, \theta, z)}{\partial \theta^2} + \frac{\partial^2 V(r, \theta, z)}{\partial z^2} = 0 \quad \text{IV.22}$$

Dans le cas des problèmes à symétrie axiale, le potentiel est indépendant de la coordonnée θ, l'équation est réduite alors à :

$$\frac{\partial^2 V(r, z)}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial V(r, z)}{\partial r} + \frac{\partial^2 V(r, z)}{\partial z^2} = 0 \quad \text{IV.23}$$

#### IV.5.1. Paramètres de la simulation

Ce travail de simulation est présenté comme un outil d'aide à la détermination spatiale des grandeurs électriques du substrat d'alumine à la rupture. Il est basé sur la reproduction de la géométrie de l'échantillon et l'environnement dans lequel les expériences ont été effectuées. Une schématisation de cette représentation à deux dimensions est donnée par la figure IV.5. Nos études de simulation sont basées sur une géométrie à symétrie axiale qui nous permet ainsi de ramener une structure de trois dimension(x,y,z) à une structure à deux dimensions (r,z). Il suffira donc de s'intéresser à la partie de la figure où  $r \geq 0$ .



**Figure IV.5 :** Exemple de configuration géométrique (électrodes, matériaux, milieu isolant) utilisée dans la simulation.

La résolution de l'équation IV.23 nécessite la connaissance des conditions limites et des paramètres du modèle. La valeur de la tension  $V_r$  est fixée sur l'électrode sphère et correspond à la tension de rupture donnée en fonction de l'épaisseur de l'échantillon. L'électrode plane est reliée à la masse ( $V=0$ ). Les permittivités relatives de l'alumine 96% et de l'huile isolante (FC 77) sont prises égales à 9 et 1,75 respectivement. La géométrie de l'électrode sphère est aussi prise en compte comme paramètre de simulation, cela se traduit par la forme (plane,

sphère,...) et ses dimensions. Quant à l'électrode reliée à la masse, ses dimensions n'ont pas d'influence sur nos calculs.

La géométrie et les dimensions considérées dans la simulation sont identiques à celles des échantillons ayant subi les tests de rupture. Ces dimensions sont :  $3\text{cm} \times 3\text{cm} \times d$  où  $d$  est l'épaisseur de l'échantillon qui varie de  $127\mu\text{m}$  à  $2.54\text{ mm}$ . La zone correspondant au cratère à l'interface électrode/alumine a été délimitée sur la représentation de l'échantillon dans la simulation. Les rayons et les hauteurs mesurés des cratères sont donnés par le tableau IV.3 :

Alumine	épaisseur	127	254	635 $\mu\text{m}$	1,016mm	2,54
96%	Rayon ( $\mu\text{m}$ )	53	87	170	212	249
	Hauteur ( $\mu\text{m}$ )	50	88	167	130	250

**Tableau IV.3 :** Estimation par le MEB du rayon et de la hauteur des cratères selon l'épaisseur.

Les hauteurs des cratères ont été déterminées grâce aux mesures par le MEB en effectuant des coupes sur les échantillons. Dans le but de réduire le nombre de mesures qui sont difficiles à obtenir, les échantillons choisis pour ces mesures pour chaque épaisseur sont ceux présentant des diamètres de cratère proches de la valeur moyenne mesurée.

## IV.5.2. Exploitation des résultats

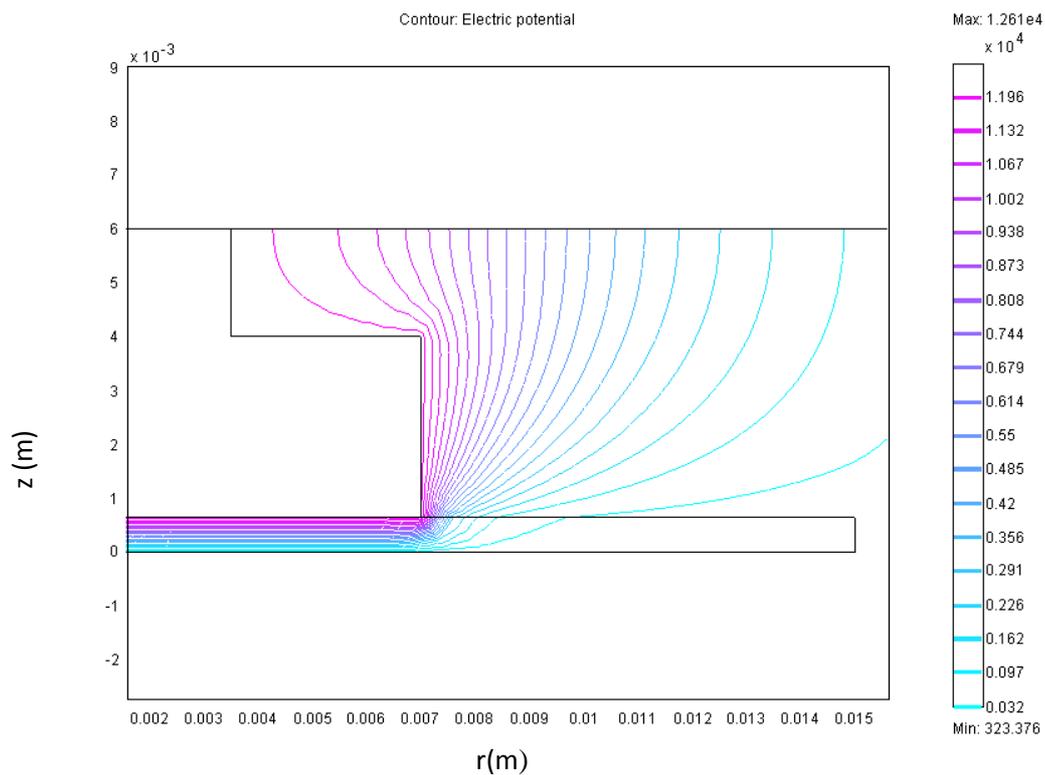
### IV.5.2.1. Distribution du champ selon la configuration d'électrodes

- **Plan/plan**

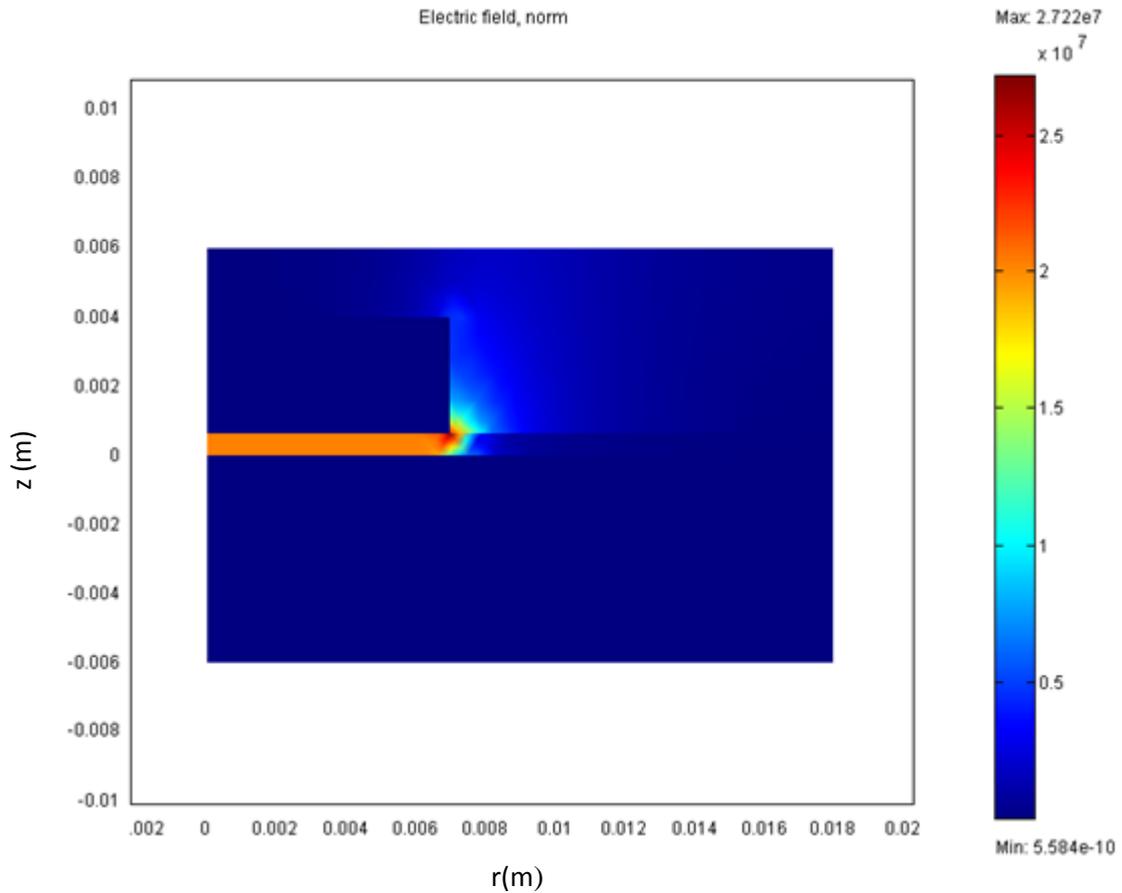
La figure IV.5.a donnée par la simulation représente les lignes du potentiel électrique, elles sont parallèles dans la zone de l'épaisseur qui se trouve sous l'électrode mais à la triple jonction (électrode, alumine, huile isolante) les lignes sont distordues. Étant donné que l'électrode inférieure reliée à la masse ne possède aucune influence, elle n'a pas été représentée sur la figure IV.6.a.

Comme le montre la figure IV.6.b, le champ électrique est uniformément réparti au sein du diélectrique et égale au champ de rupture pour l'échantillon d'épaisseur  $635\mu\text{m}$  et de

pureté 96%. L'uniformité se trouve rompue dans la zone triple jonction (alumine, électrode plane, huile isolante) où il apparaît un champ d'une valeur supérieure mais proche à celle du champ uniforme. Cela explique nos observations expérimentales concernant l'apparition du cratère en configuration plan/plan. En effet comme le champ électrique est uniforme, la probabilité qu'un cratère apparaît sur l'une ou l'autre des surfaces est pratiquement la même. L'intensification du champ électrique à la triple jonction semble ne pas favoriser l'apparition systématique du cratère sur la surface de l'échantillon à cet endroit là de triple jonction. Dans ce cas, en plus de l'effet triple jonction, il faut tenir compte aussi de la distribution aléatoire des défauts de surface sur chaque surface de l'échantillon. En effet l'intensification du champ engendré par les défauts de surface ne peut être négligé devant l'intensification due à l'effet triple jonction et quand le cratère apparaît du côté de la surface où il n'y a pas effet triple jonction cela peut s'expliquer par la prédominance de l'intensification du champ induite par les défauts de surface par rapport à celle induite par l'effet triple jonction.



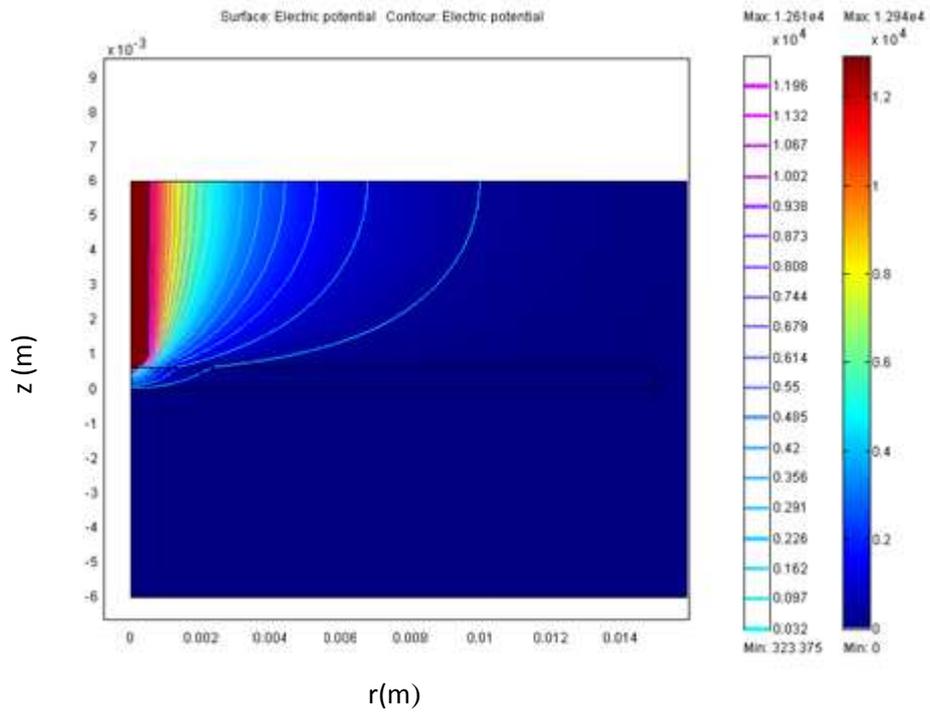
**Figure IV.6.a** : Lignes du potentiel électrique en configuration plan/plan



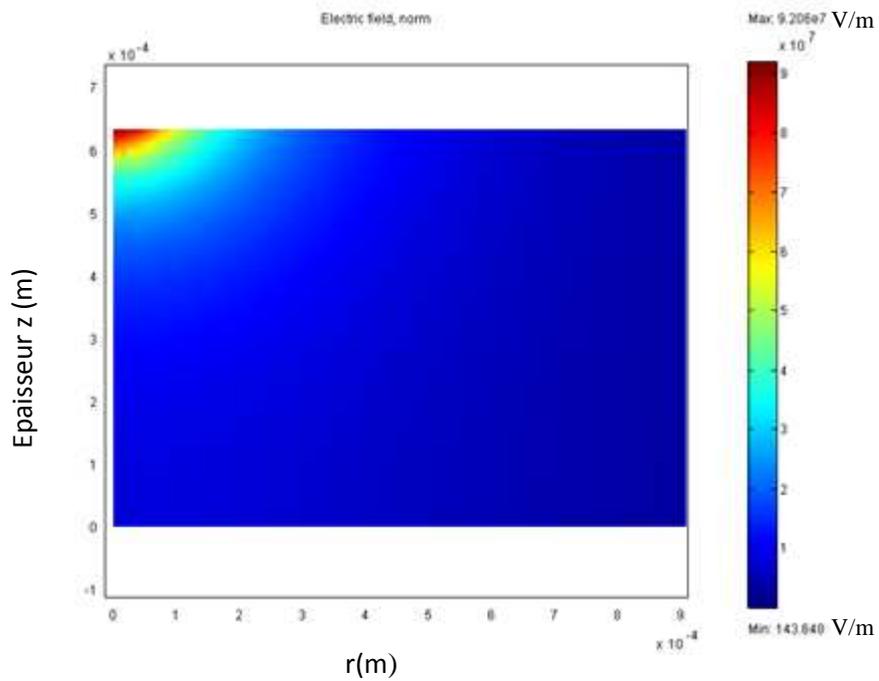
**Figure IV.6.b :** Distribution du champ électrique en configuration plan/plan

- **Sphère/plan**

Contrairement à la configuration plan/plan, les lignes du potentiel divergent et il apparaît des zones d'intensification du champ électrique très importante au voisinage de la surface en contact avec l'électrode sphère (figure IV.7).

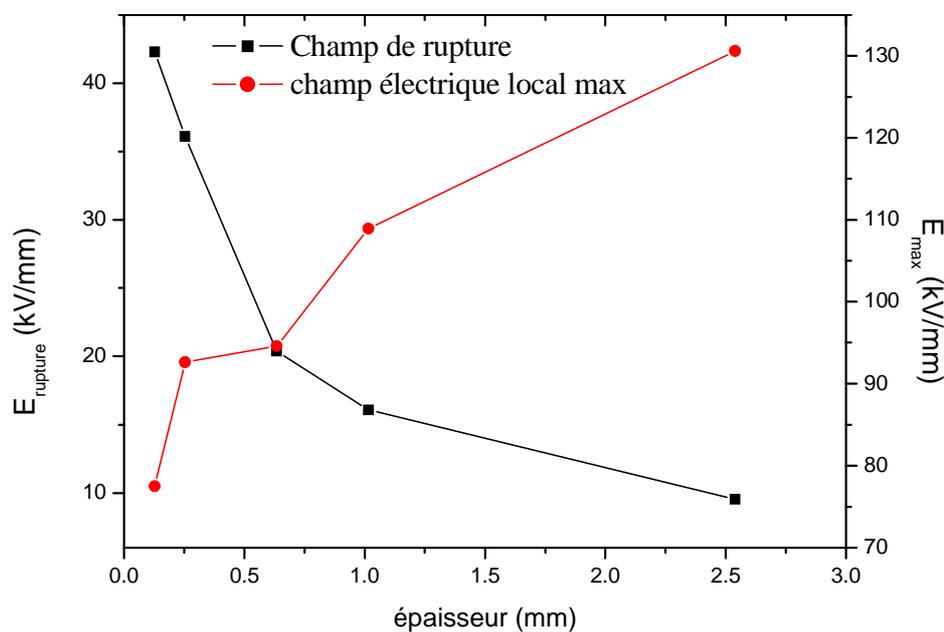


**Figure IV.7.a:** Ligne et distribution du potentiel (en Volts) électrique à la rupture diélectrique en configuration sphère/plan



**Figure IV.7.b :** Distribution du champ électrique à la rupture diélectrique en configuration sphère/plan.

Nos tests de rupture en AC ont montré que le cratère dans le cas d'une configuration sphère plan apparaît toujours à la surface en contact avec l'électrode sphère. L'intensification du champ électrique induite par cette configuration d'électrodes est donc très importante. En effet, pour les échantillons d'alumine 96% d'épaisseur 635  $\mu\text{m}$  qui possèdent un champ de rupture égale à 20,37 kV/mm, cette intensification du champ atteint la valeur de 94,6 kV/mm alors qu'en configuration plan/plan l'intensification du champ dû à l'effet triple jonction atteint 27,22 kV/mm. La figure IV.8 illustre le champ de rupture et le champ électrique maximal local, autrement dit l'intensification du champ, atteint à la rupture pour chaque épaisseur.



**Figure IV.8** : Evolution du champ électrique local maximal donné par la simulation et du champ électrique de rupture expérimental en fonction de l'épaisseur.

#### IV.5.2.2. Détermination de l'énergie électrique en fonction de l'épaisseur

Les figures IV.9 et IV.10 présentent la simulation de la répartition de la densité d'énergie électrique à la rupture dans l'échantillon entier et dans la zone correspondant au cratère respectivement dans l'alumine 96% pour les différentes épaisseurs. Comme pour le champ électrique, elles montrent aussi l'apparition de zones d'intensification de densité d'énergie électrique.

De la simulation de la densité d'énergie électrique dans l'échantillon qui est donnée par :

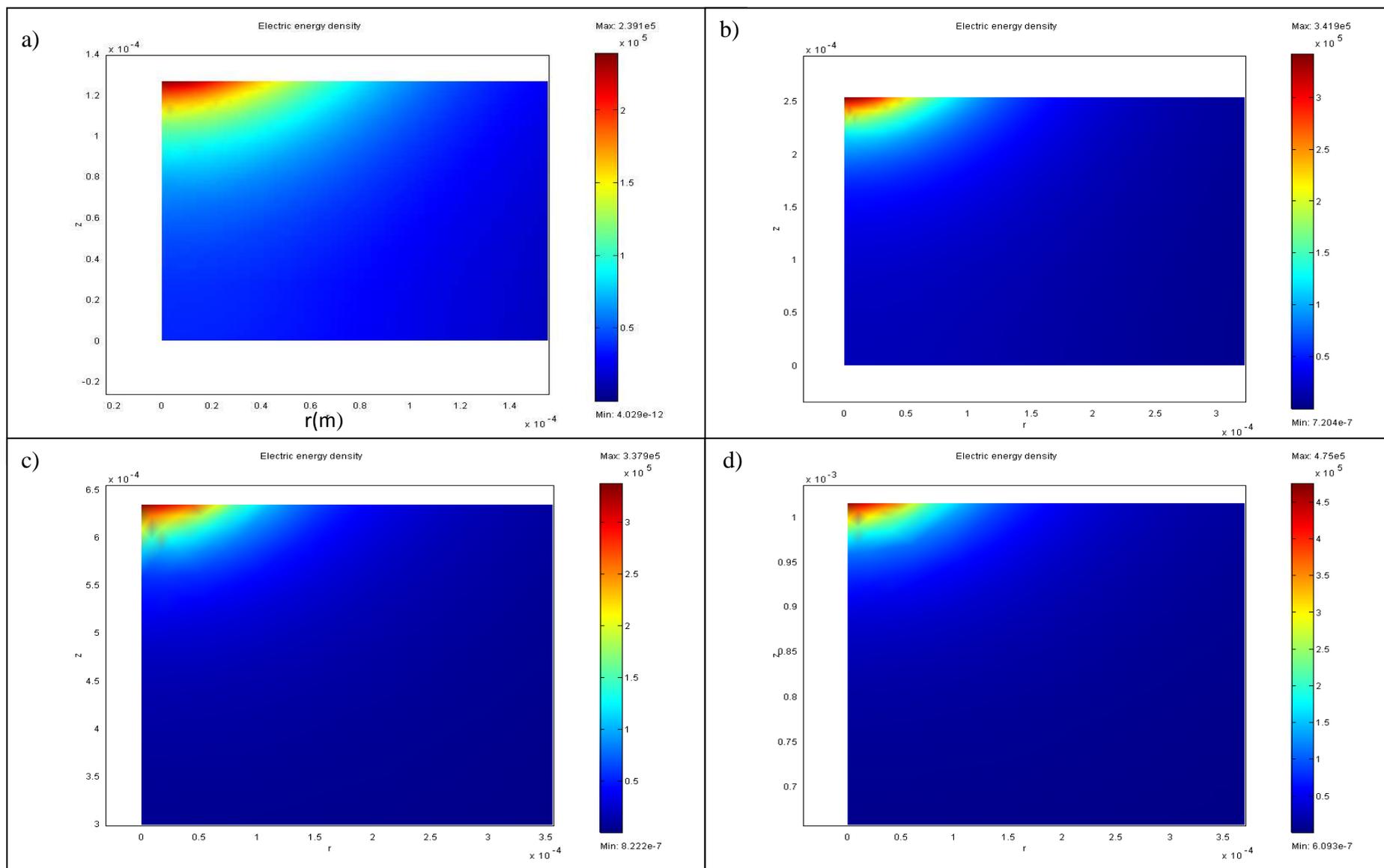
$$w = \frac{1}{2} DE \quad \text{IV.24}$$

où D est le déplacement électrique

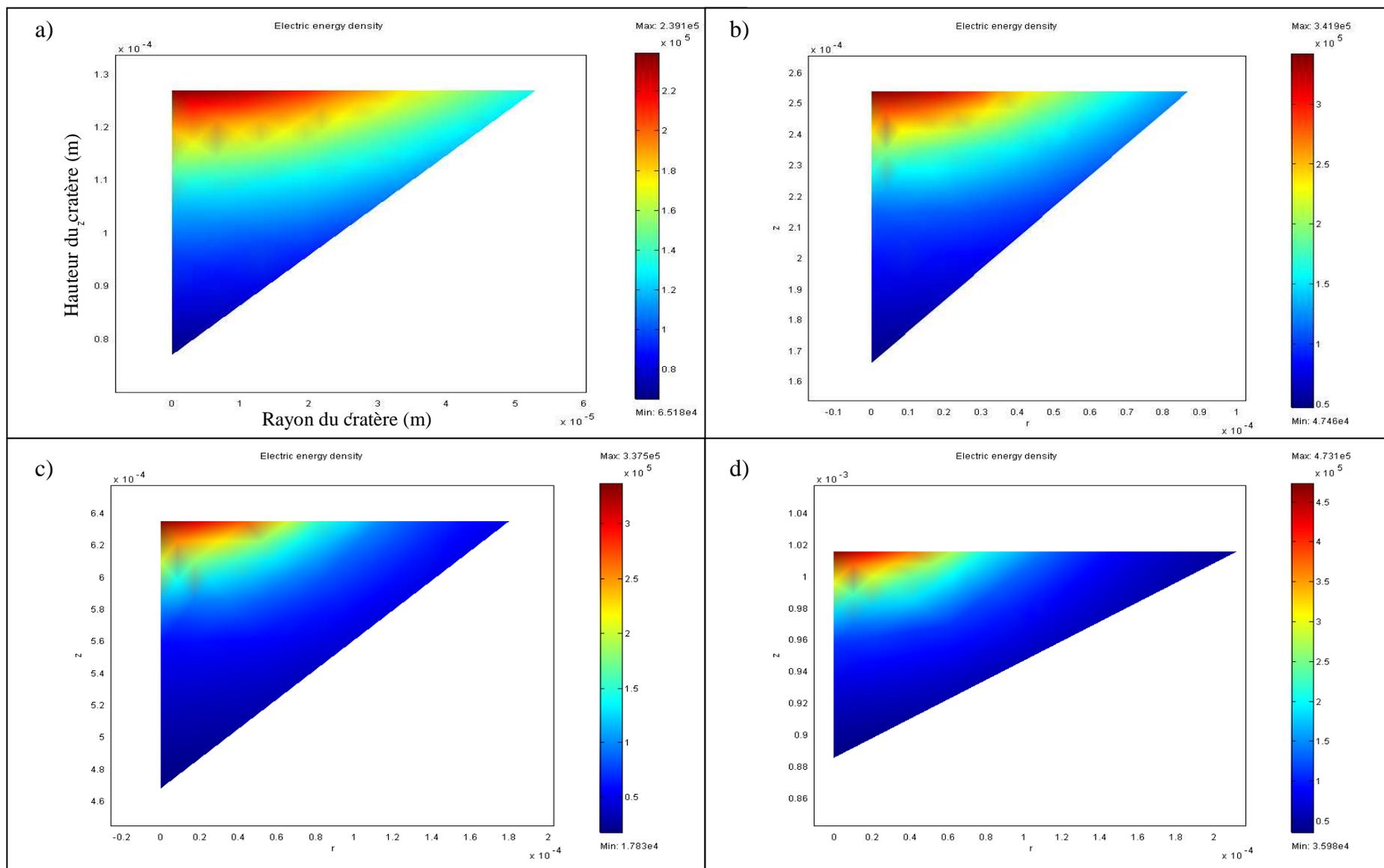
on déduit l'énergie électrique dans un volume V :

$$W = \iiint_V w dV \quad \text{IV.25}$$

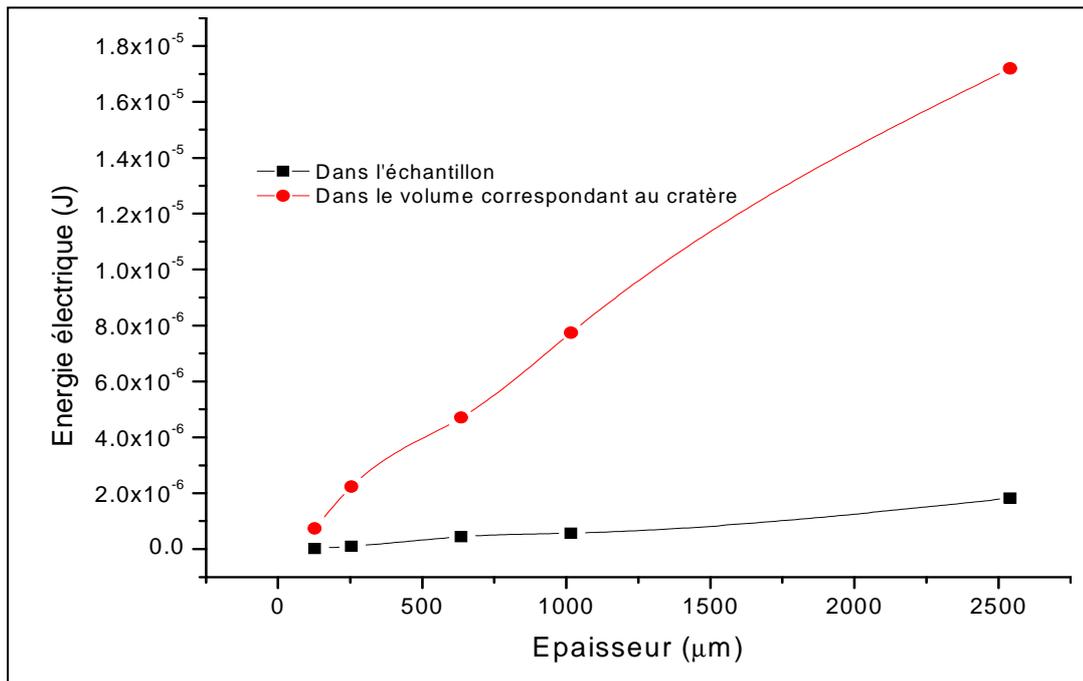
L'énergie électrique stockée dans l'échantillon entier ainsi que celle stockée dans le volume correspondant au cratère a été calculée pour chaque épaisseur et reportée sur la figure IV.11. L'amorçage de la rupture diélectrique est caractérisé par la formation du cratère. L'énergie électrique stockée dans le volume de matière correspondant au cratère est alors libérée conduisant à la formation du cratère. Cette énergie peut être considérée comme étant l'énergie nécessaire à l'amorçage de la rupture diélectrique.



**Figure IV.9 :** Distribution des densités d'énergie électrique à la rupture pour les différentes épaisseurs : a) 0,127 mm. b) 0,254mm. c)0,635 mm. d) 1,016mm.



**Figure IV.10 :** Distribution des densités d'énergie électrique à la rupture diélectrique dans la zone correspondant au cratère pour les différentes épaisseurs : a) 0.127mm. b) 0.254 mm. c)0.635 mm. d) 1,016 mm.



**Figure IV.11** : Evolution de l'énergie électrique selon l'épaisseur

## IV.6. Corrélation entre le renforcement mécanique et le renforcement diélectrique de l'alumine par la zircone

Cette partie du travail concerne l'étude de la rigidité diélectrique du matériau composite alumine zircone choisi en raison des bonnes propriétés mécaniques, sous certaines conditions (% de zircone, taille des grains,..) qu'elle présente comparée à l'alumine. En effet, sous l'effet d'une contrainte mécanique, la transformation quadratique –monoclinique de la zircone très utilisée pour le renforcement mécanique de l'alumine, permet de stopper la propagation des fissures dans le composite alumine/zircone et améliorer ainsi sa ténacité et sa contrainte à la rupture.

### IV.6.1. Phases de la zircone

La zircone peut présenter trois formes polymorphiques selon la température avec trois structures cristallographiques possibles : monoclinique, quadratique et cubique.

A température ambiante et jusqu'à 1170°C, elle présente une structure monoclinique puis elle se transforme en phase quadratique qui demeure stable jusqu'à 2371°C. A partir de cette température, la zirconne se stabilise dans la phase cubique jusqu'à la fusion. Le frittage de la zirconne à des températures voisines de 1500°C, conduit donc à l'apparition de la phase quadratique. Lors du refroidissement, la transformation inverse se produit accompagnée d'une augmentation du volume à cause de la différence des paramètres de maille des deux structures induisant ainsi des microfissurations qui peuvent être dommageables au matériau. Pour éviter cet endommagement, la zirconne est stabilisée dans la phase quadratique ou cubique grâce à l'ajout de divers oxydes tel que l'yttrium ( $Y_2O_3$ ) en respectant un bon dosage de l'ajout et la température de frittage (figure IV.12).

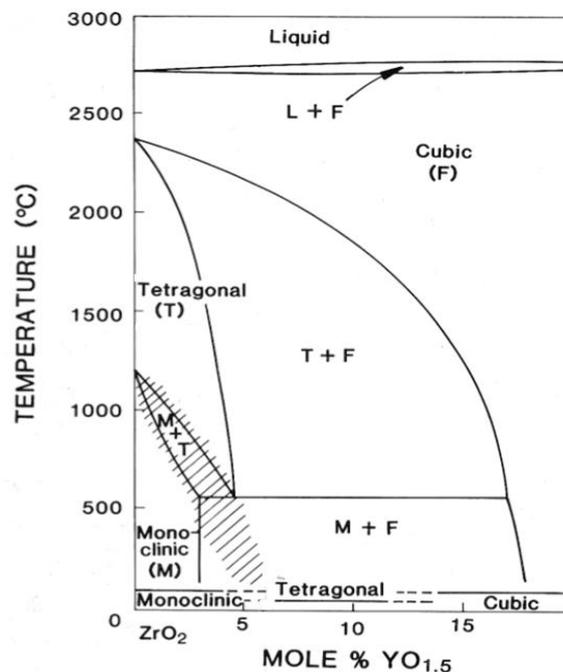


Figure IV.12 : Diagramme de phase de  $ZrO_2/Y_2O_3$  [SCO 75].

#### IV.6.2. Renforcement de l'alumine par transformation de phase de la zirconne (quadratique-monoclinique): transformation martensitique

La transformation quadratique-monoclinique de la zirconne est une transformation de type martensitique. Une transformation martensitique est une transformation associée à l'origine aux matériaux métalliques puis étendue aux matériaux céramiques ainsi qu'à un très grand nombre de minéraux et peut être défini comme suit : « La transformation martensitique est une transition structurale displacive du premier ordre présentant une déformation

homogène du réseau cristallographique, constituée essentiellement par un cisaillement » [DEV 04].

La transformation displacive est caractérisée par des déplacements atomiques de l'ordre de grandeur d'un dixième de la distance interatomique. Ils sont parfaitement corrélés pour un très grand nombre d'atomes de manière qu'ils induisent une déformation homogène de la maille cristalline sans qu'il y ait de diffusion. Le changement microstructural engendré par cette transformation se déroule essentiellement par cisaillement.

A température ambiante, la zircone quadratique post frittage retenue est métastable et tout apport d'énergie pourra la faire évoluer vers l'état stable monoclinique. Par exemple sous l'effet d'une sollicitation externe, le champ de contrainte au front d'une fissure provoque la transformation quadratique- monoclinique. L'augmentation du volume causée par cette transformation, va exercer des contraintes de compression sur la fissure et empêcher ainsi sa propagation.

L'incorporation de la zircone en petite quantité dans la matrice d'alumine peut amener cette dernière à développer, sous certaines conditions, des propriétés mécaniques considérablement améliorées par rapport à l'alumine, voire même à la zircone. En effet certains travaux [GUT 06] ont montré que le composite alumine + 10% (en volume) zircone offre des propriétés mécaniques plus intéressantes comparées à celle des autres composites alumine zircone. Sa ténacité  $6,1 \text{ Mpa m}^{1/2}$  est largement supérieure à celle de l'alumine ( $4,2 \text{ Mpa m}^{1/2}$ ) et sa contrainte à la rupture, supérieure à 650 MPa, dépasse largement celle de l'alumine (>250 Mpa) et de la zircone (>500Mpa).

La transformation de phase quadratique-monoclinique de la zircone dans la matrice d'alumine selon le processus décrit précédemment est à l'origine de cette amélioration. La condition nécessaire pour une telle amélioration est la rétention post frittage de la phase quadratique de la zircone dans la matrice d'alumine. Cette rétention peut être possible grâce à des stabilisants étrangers en très petites quantités ou uniquement à l'effet stabilisant de la matrice d'alumine lorsque la proportion de la zircone dans la matrice ne dépasse pas 10 % (en volume).

### IV.6.3. Elaboration des échantillons aluminés et alumine-zircone

L'élaboration des échantillons nécessaires à notre étude a été effectuée en utilisant la méthode conventionnelle décrite au chapitre I. En plus des échantillons alumine/zircone, des échantillons alumine pure servant d'échantillons témoins ont été élaborés.

#### IV.6.3.1. Mise en œuvre des poudres

La poudre d'alumine utilisée nous est délivrée par la compagnie Alfa Aesar. Elle présente une phase  $\alpha$  de pureté 99,9% et possédant une taille de grain de 2  $\mu\text{m}$ . Quant à la poudre de zircone, elle possède une pureté de 99,5% et une taille de grain inférieure à 1 $\mu\text{m}$ . La poudre de zircone est fournie stabilisée avec 5,3 % d'yttrium.

Etant donnée la faible quantité des poudres utilisées, le mélange formé de  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}\alpha\text{+10\%}$  en masse de  $\text{ZrO}_2$  est réalisée par voie humide. Afin d'éliminer les agglomérats et réduire les agrégats pour obtenir un mélange homogène, nous avons versé dans le flacon contenant le mélange (Alumine+zircone+eau) des billes d'alumine de 10 mm de diamètre. Ensuite nous l'avons laissé dans un broyeur pendant 24 heures avec une vitesse de rotation moyenne.

A la fin du broyage, les billes d'alumine sont séparées à l'aide d'un tamis et le reste est mis dans une étuve réglée à 100°C pendant 24 heures pour le séchage. La matière ainsi obtenue est ensuite broyée puis passée au tamis.

La mise en forme est effectuée par pressage uni-axiale avec une pression de 14MPa. Une masse de 3g de poudre (que ce soit poudre d'alumine ou poudre du mélange alumine/zircone) est pesée puis introduite dans une matrice cylindrique de 30 mm de diamètre. Une pression uni-axiale est alors appliquée à l'aide d'une presse. Avant le relâchement du piston, la pression est maintenue à la valeur 14 MPa pendant une minute. L'objectif de cette opération est d'obtenir des pastilles avec une meilleure densité et une bonne tenue mécanique à cru.

En raison de la bonne tenue mécanique à cru de la plus part de nos échantillons, nous avons supprimé l'étape qui consiste à faire subir préalablement aux poudres un ajout de liant.

#### IV.6.3.2. Frittage

Les comprimés obtenus après l'étape de pressage sont frittés sous air à l'aide d'un four de type Nabertherm, modèle LHT04/17. Le cycle de frittage pris en compte est le même pour tous les échantillons et est :

Vitesse de montée en température de  $T_{\text{ambiante}}$  à  $500^{\circ}\text{C}$  :  $80^{\circ}\text{C/h}$

Vitesse de montée de  $500^{\circ}\text{C}$  à la température de frittage  $1700^{\circ}\text{C}$  :  $600^{\circ}\text{C/h}$

Durée du palier de frittage à  $1700^{\circ}$  : 1h

Vitesse de descente en température de  $1700^{\circ}\text{C}$  à  $T_{\text{ambiante}}$  :  $80^{\circ}\text{C/h}$

La première étape du frittage partant de la température ambiante jusqu'à  $500^{\circ}\text{C}$  consiste à éliminer l'eau contenue dans les pastilles. En effet, nous avons remarqué de la mesure de la masse de chaque échantillon avant et après frittage une diminution dont l'écart relatif est estimé à environ 5.67%. Cette différence ne peut s'expliquer que par l'élimination de l'eau des pastilles. Au-delà de cette température, l'étape suivante est caractérisée par un retrait géométrique des pastilles et une diminution significative de la porosité.

#### IV.6.4. Caractérisation physico-chimique des échantillons

##### IV.6.4.1. Densité

La mesure de la masse volumique des échantillons frittés peut être effectuée par deux méthodes :

La méthode géométrique :  $\rho = m/V$

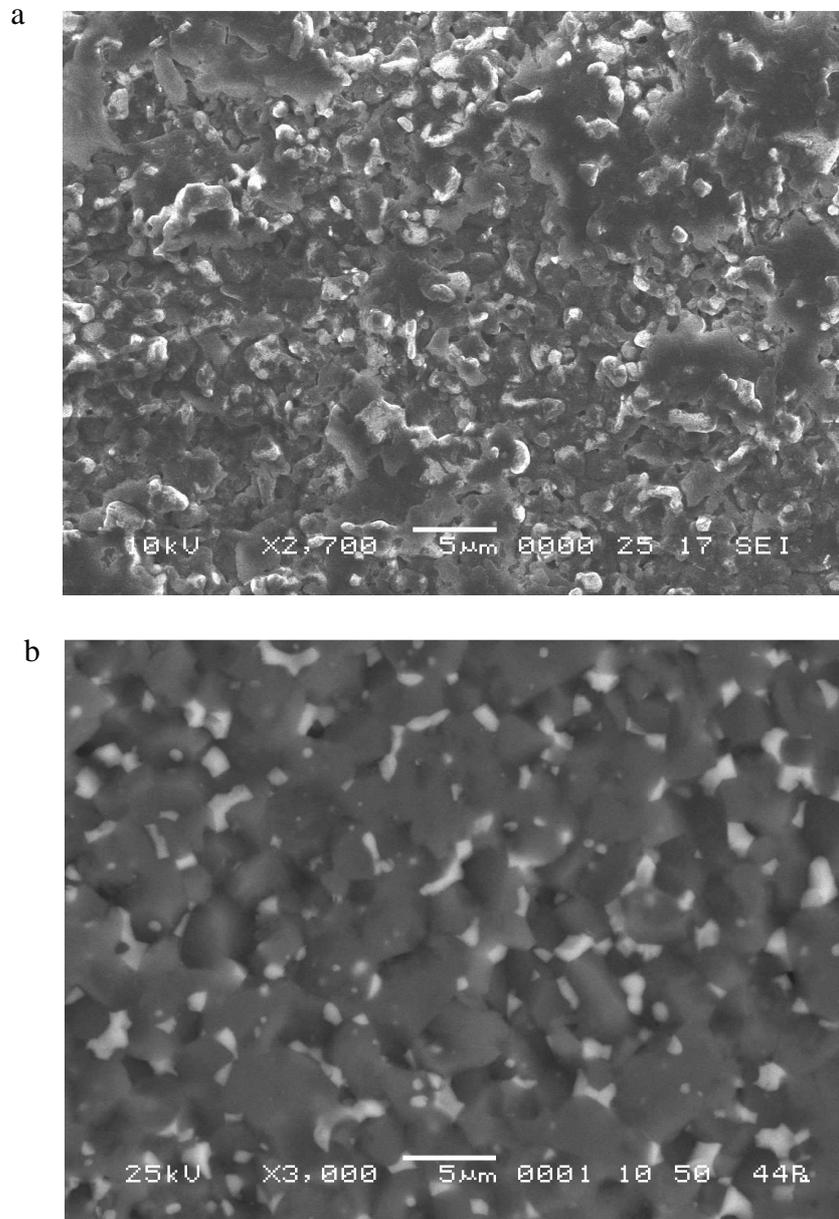
Poussée d'Archimède :  $\rho = \frac{m_{\text{air}}}{m_{\text{air}} - m_{\text{eau}}} \rho_0$

Comme nos échantillons frittés présentent une forme physique globalement parfaite la méthode géométrique a été utilisée pour la détermination de la masse volumique. Les résultats trouvés sont environ  $3,79 \text{ g/cm}^3$  pour l'alumine et  $4,1 \text{ g/cm}^3$  pour la composite alumine/zircone

##### IV.6.4.2. Microstructure

Les microstructures obtenues à l'aide du MEB sont représentées sur les micrographies IV.2.a et IV.2.b. La micrographie IV.2.a montre la microstructure de l'alumine seule, elle présente une microstructure assez dense tout comme la microstructure de la composite alumine/zircone donnée par la micrographie IV.2.b. Cette dernière présente un contraste important qui nous permet de distinguer entre les grains d'alumine et les grains de la zircone

de taille assez faible et qui forment une phase secondaire entre les grains d'alumine (aux joints de grain).

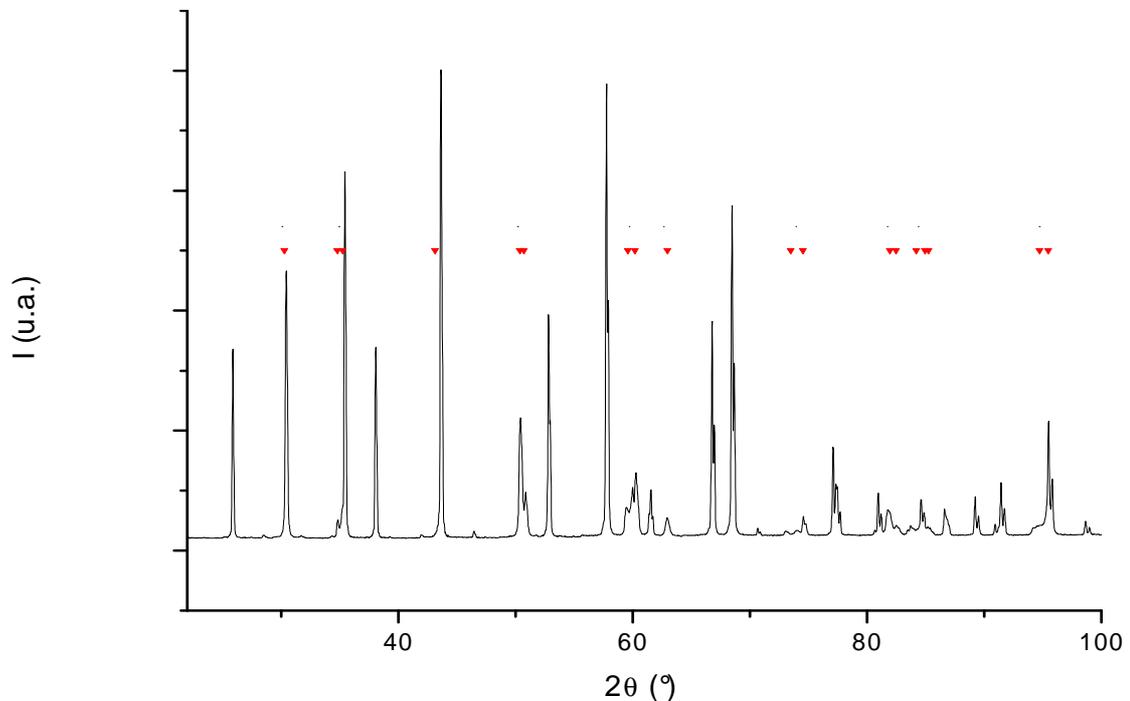


**Micrographie IV.2 :** Microstructure de : a) alumine. b) alumine/zircone.

#### IV.6.4.3. Diffractométrie des rayons X

Les diffractométries des rayons X mettent en évidence une très grande majorité de la phase quadratique de la zircone dans la matrice d'alumine (figure IV.13). Cependant une présence de la phase cubique n'est pas exclue car les pics correspondant à cette phase se trouvent noyés dans ceux de la phase quadratique. Par ailleurs les paramètres de maille

donnés se trouvent un peu différent de ceux de la phase quadratique de la zirconite sans ajouts stabilisants. En effet cette différence est expliquée par la substitution des ions de zirconium par d'autres cations comme yttrium dont le rayon ionique est plus grand que celui de la zirconite



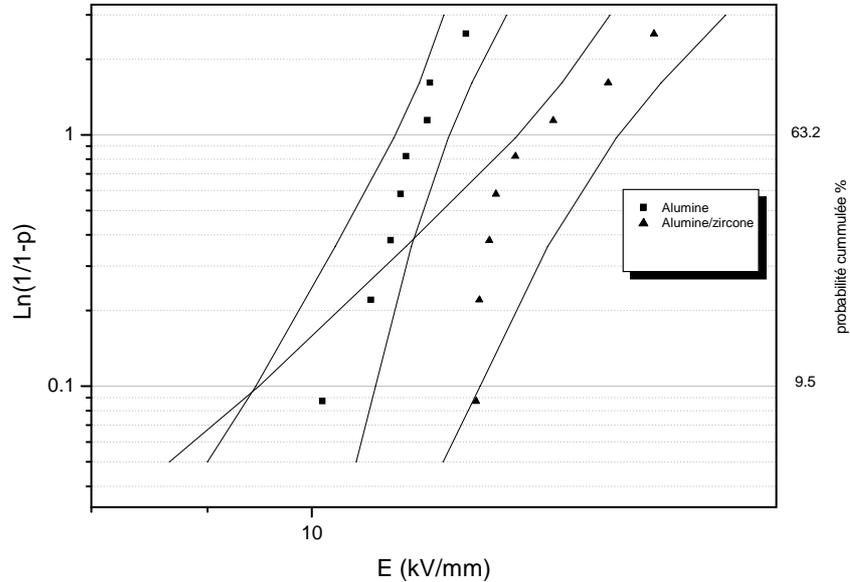
**Figure IV.13** : Spectre en diffraction X pour la composite  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{ZrO}_2$ . Les indices en couleur rouge indiquent les pics de la phase quadratique de la zirconite. Les autres pics correspondent à la phase  $\alpha$ -alumine

#### IV.6. 5. Etude de la rigidité diélectrique des échantillons

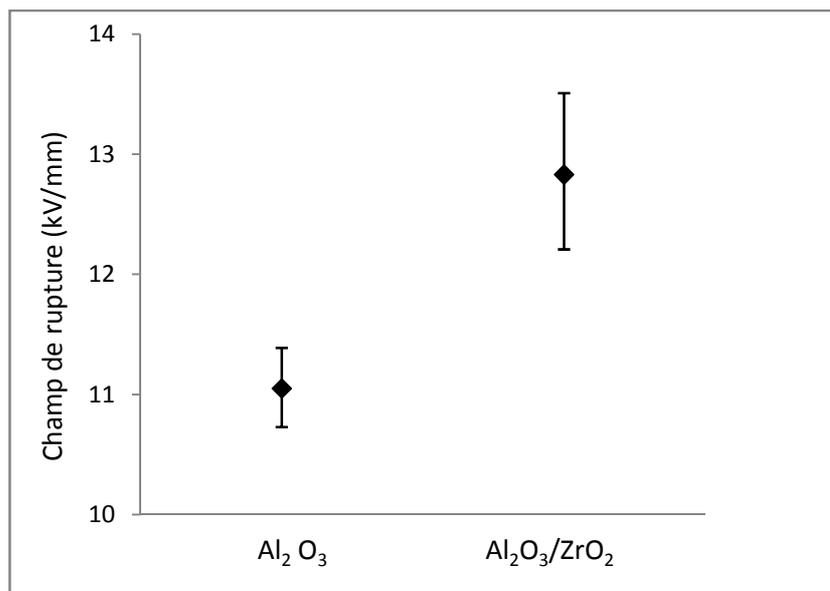
Afin d'assurer un bon contact avec l'électrode, les échantillons ont subi un polissage identique avec des disques à différentes granulométrie 80-220-1200 successivement.

Les tests de rupture sont effectués sous une tension alternative à 50Hz. Le système d'électrode utilisé est sphère plan. L'épaisseur des échantillons alumine et alumine zirconite soumis au test de claquage est d'environ 2,3 mm. Les résultats expérimentaux au nombre de huit points pour chaque matériau sont traités avec la statistique de Weibull. La figure IV.14.a illustre les points de rupture de chaque matériau (alumine et alumine/zirconite) ainsi que leur probabilité cumulée de rupture, les points suivent pratiquement la même allure, les intervalles de confiance des champs de rupture pour chaque matériau sont distincts sauf pour les

probabilités cumulées inférieures à 30% où les intervalles se chevauchent. Le paramètre  $\beta$  vaut 28,4 dans le cas de l'alumine et 14,85 dans le cas du composite alumine/zircone. Cela montre que la dispersion est plus importante dans le cas du composite alumine/zircone mais en générale elle reste relativement faible et donc reproductible des valeurs du champ de claquage.



**Figure IV.14.a :** La probabilité cumulée du champ de claquage pour l'alumine seule et la composite alumine-zircone selon le diagramme de Weibull avec des intervalles de confiance à 90 %.



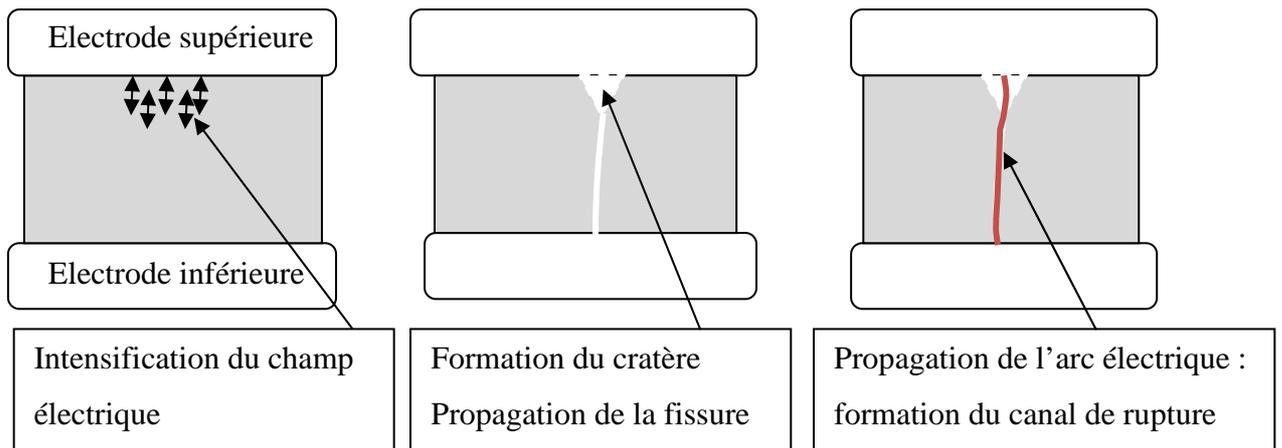
**Figure IV.14.b :** Rigidité diélectrique de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  et  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{ZrO}_2$ .

Les résultats trouvés et illustrés sur la figure IV.14.b montrent que la rigidité diélectrique du composite l'alumine/zircone, où la teneur en alumine est d'environ 90%, est supérieure à celle de l'alumine alors que cette dernière présente une pureté très élevée (99,9%). La différence relative est de 16%, assez importante pour affirmer que la différence de la rigidité diélectrique n'est pas due à des fluctuations dans nos mesures. Par ailleurs, les intervalles de confiance des valeurs du champ de rupture pour chaque matériau représentés sur la figure IV.14 montrent qu'ils ne sont pas entremêlés et qu'il y a une nette différence entre la limite supérieure de l'intervalle de confiance du champ de rupture de l'alumine et la limite inférieure de l'intervalle de confiance du champ de rupture de la composite alumine/zircone. Cette différence est estimée à 82%.

Cette amélioration de la rigidité diélectrique est attribuée à la transformation de phase quadratique-monoclinique de la zircone dans l'alumine. Toutes les conditions pour que cela se produise sont réunies. En effet, le spectre de diffraction X du composite  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{ZrO}_2$  montre la présence de la phase quadratique de la zircone dans l'alumine et l'application de la contrainte électrique induit donc cette transformation qui s'accompagne par l'augmentation du volume des grains de la zircone. Les défauts ou les fissures préexistants et qui sont susceptibles de se propager se trouvent alors retardés causant ainsi l'augmentation de la rigidité diélectrique. De cette étude on peut conclure que le mécanisme de claquage diélectrique des céramiques à base d'alumine est fortement associé à la propagation des fissures et tout changement de comportement de ces dernières, influence la rigidité diélectrique.

#### **IV.7. Interprétation du processus de claquage diélectrique de l'alumine**

Nous avons vu précédemment que l'initiation de la rupture commence par la destruction locale du matériau d'où la formation du cratère très visible pour des épaisseurs importantes ( $> 600\mu\text{m}$ ) dans la zone où les contraintes se trouvent intensifiées par la configuration géométrique des électrodes et les défauts sollicités par l'électrode à l'application du champ électrique. Par ailleurs nous avons remarqué qu'un obstacle à la propagation de la fissure comme la transformation de phase de la zircone dans la matrice d'alumine, de la phase quadratique à la phase monoclinique, déclenchée par l'application d'une contrainte électrique améliore le champ électrique. Tout ceci nous amène à schématiser la rupture diélectrique selon les étapes illustrées sur la figure IV.15.

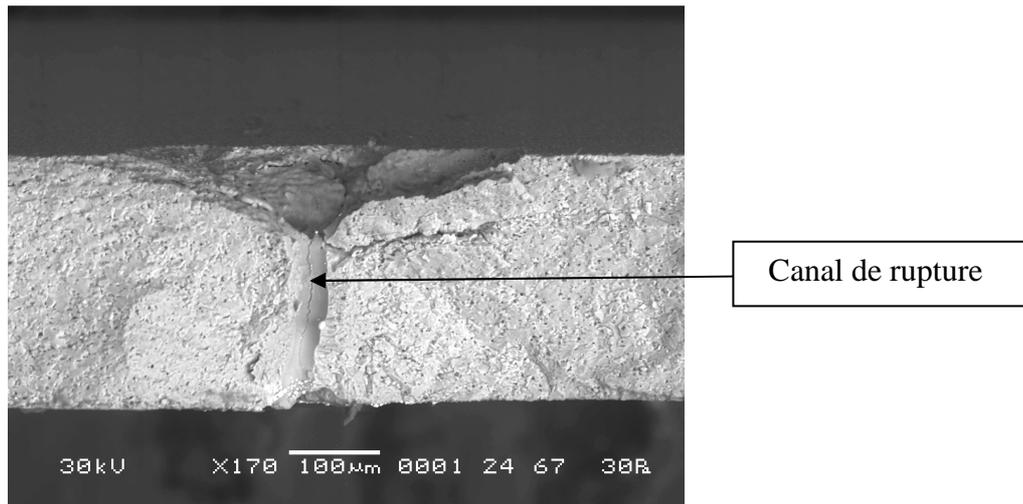


**Figure IV.15** : Schématisation du processus de rupture diélectrique

En effet, l'application d'une tension suffisamment importante, induit des zones d'intensification du champ électrique dont l'apparition dépend de la configuration géométrique des électrodes et de la distribution des défauts surfaciques. A l'intensification du champ électrique est associée une intensification de la contrainte mécanique si importante qu'elle cause une destruction locale brutale du matériau qui se manifeste par l'éjection de la matière et l'apparition du cratère. Ce dernier peut être considéré, après sa formation, comme un défaut concentrateur de contraintes.

Le choc causé par cette destruction brutale conduit à la propagation des fissures notamment de la fissure principale qui se propage à travers l'épaisseur et qui est responsable du claquage diélectrique. La propagation de cette fissure principale, à partir du fond du cratère jusqu'à l'interface opposé, est suivie par la propagation de l'arc électrique conduisant ainsi à la formation du canal de rupture (Micrographie IV.3) et au claquage diélectrique.

Notons que contrairement aux travaux d'Owate [OWA 92a, OWA 92b], nos observations exposées précédemment (§. IV.4) montrent que l'étape de propagation du canal de rupture vient après la formation du cratère qui s'avère être une étape cruciale dans le processus de rupture diélectrique de l'alumine.



**Micrographie IV.3** : Aspect de la rupture diélectrique à l'intérieure de l'alumine.

#### IV.8. Modélisation de la rupture diélectrique dans l'alumine

Comme le processus de rupture diélectrique est basé sur la propagation d'une fissure principale, le critère de Griffith qui aborde la rupture mécanique fragile d'un point de vue énergétique peut être exploité pour interpréter le claquage diélectrique dans les céramiques et dans l'alumine en particulier.

Selon Griffith, le processus de séparation à partir d'un milieu continu autrement dit la création d'une fissure exige une énergie qui est proportionnelle à l'air créée [BUI 77] :

$$dW_s = \gamma 2\pi ds \quad \text{IV.26}$$

$\gamma$  étant l'énergie superficielle caractéristique du matériau,  $ds$  étant l'aire géométrique de la nouvelle fissure.

L'augmentation de l'énergie de surface nécessaire à la création d'une fissure ne peut provenir que de l'énergie de déformation élastique qui se libère lors de l'avancée de la fissure.

Le critère de Griffith suppose l'existence de défauts tels que les entailles, provoquant des concentrations de contraintes, à partir desquels une fissure peut se propager. Il stipule que la propagation d'une fissure se déclenche quand l'énergie élastique libérée au cours d'un avancement élémentaire  $da$  de la surface est au moins égale à l'énergie de formation de surface de fissure. Autrement dit, une fissure se propage si la perte infinitésimale de l'énergie élastique est suffisante pour l'accroissement d'une fissure. Cela se traduit par l'équation :

$$\frac{dW_e}{da} \geq \frac{dW_s}{da} \quad \text{IV.27}$$

où  $a$  représente la taille du défaut initiale.

Ce critère peut être utilisé pour déterminer la valeur de la contrainte critique en traction pour qu'une fissure (ou défaut) d'une certaine dimension puisse se propager.

Dans une rupture diélectrique, en analogie avec le concept de Griffith, l'énergie libérée considérée est d'origine électrostatique et élastique. En effet, sous l'application d'un champ électrique, une énergie élastique et électrostatique est stockée au sein du matériau, à une valeur critique du champ électrique cette énergie est libérée permettant ainsi la propagation de la fissure.

La densité d'énergie totale sous l'effet d'un champ électrique appliqué est donnée par la somme :

$$w = w_{el} + w_e \quad \text{IV.28}$$

où  $w_{el}$  représente la densité d'énergie électrostatique et est donnée par :

$$w = 1/2 DE \quad \text{IV.29}$$

avec  $D$  est le déplacement électrique ( $D = \epsilon E$ )

Sous l'application d'un champ électrique suffisamment élevé, les forces apparaissant et agissant sur une unité de surface définissent les contraintes à l'intérieure du diélectrique. La densité de l'énergie de déformation élastique due à ces contraintes s'exprime alors par :

$$w_e = \frac{\sigma^2}{eY} \quad \text{IV.30}$$

où  $Y$  est le module de Young,  $\sigma$  représente la contrainte de Maxwell induite par l'application du champ électrique et dont la forme simplifiée est donnée par :

$$\sigma = 1/2 \epsilon E^2 \quad \text{IV.31}$$

En assimilant le canal de rupture à une géométrie cylindrique de rayon  $r$  et de longueur  $l$  et en remplaçant les équations IV.29, IV.30 et IV.31 dans l'équation IV.28, la variation de l'énergie quand le canal de rupture progresse d'un élément  $dl$  est alors donnée par :

$$dW = \left( \frac{1}{2} \varepsilon E^2 + \frac{1}{8} \frac{\varepsilon^2 E^4}{Y} \right) \pi r^2 dl \quad \text{IV.32}$$

Dans le cas des céramiques où le module de Young est très élevé, la partie électrostatique dans l'équation IV.32 est dominante pour des champs électriques inférieure à la valeur de  $10^4$  kV/mm . Comme les champs de claquage dans les différentes alumines étudiées est de l'ordre de quelques dizaines de kV/mm et que l'intensification du champ électrique local n'atteint pas  $10^3$  kV/mm, on peut négliger la composante énergie élastique. En effet pour une valeur de champ électrique égale à 10kV/mm, la partie électrostatique est de l'ordre de  $10^3$  J/m<sup>3</sup> alors que la partie de l'énergie élastique est de l'ordre de  $10^{-5}$  J/m<sup>3</sup>. Par conséquent pour les céramiques l'équation IV.32 est réduite à :

$$dW = \frac{1}{2} \varepsilon E^2 \pi r^2 dl \quad \text{IV.33}$$

Par ailleurs l'accroissement de l'énergie nécessaire pour la création d'une nouvelle surface  $ds$  autrement dit pour la progression du canal de rupture d'une longueur  $dl$  est :

$$dW_s = \gamma 2\pi ds = \gamma 2\pi r dl \quad \text{IV.34}$$

Le critère qui détermine le champ critique de rupture diélectrique est de ce fait basé sur l'équilibre entre l'énergie électrostatique restituée lors de l'avancée d'une fissure et l'énergie dissipée par la création de nouvelles surfaces :

$$\frac{dW}{dl} = \frac{dW_s}{dl} \quad \text{IV.35}$$

Et le champ critique est alors donné par la relation :

$$E = \left( \frac{4\gamma}{\varepsilon_0 \varepsilon_r r} \right)^{1/2} \quad \text{IV.36}$$

Dans le cadre d'une rupture mécanique  $\gamma$  définit l'énergie de surface de rupture. Elle est estimée à partir de tests de rupture mécanique et se décompose en deux termes  $\gamma_s$  et  $\gamma_p$  . Par

ailleurs cette énergie de surface de rupture est reliée à la ténacité  $K_{1c}$  et au module de Young  $Y$  selon la relation :

$$\gamma = \gamma_s + \gamma_p = \frac{K_{1c}^2}{Y} \quad IV.37$$

où  $\gamma_s$  représente l'énergie libre de surface et  $\gamma_p$  l'énergie de déformation plastique.

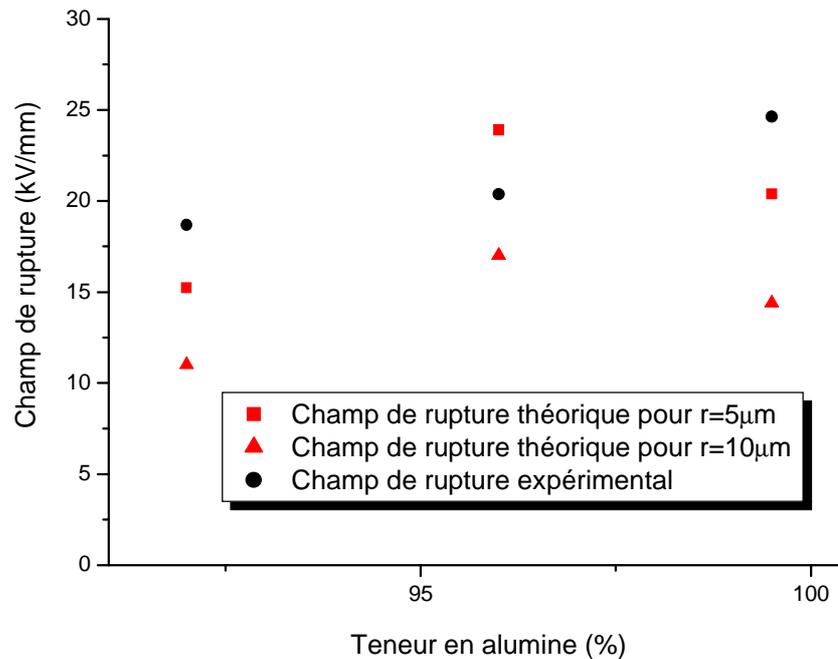
Dans la majorité des cas, les tests de rupture mécanique effectués sur différents matériaux ont montré que l'énergie libre de surface est négligeable devant l'énergie de déformation plastique. En effet, pour les solides,  $\gamma_p$  varie de  $10^3$  à  $10^8$  mJ/m<sup>2</sup> alors que  $\gamma_s$  ne dépasse pas  $10^3$  mJ/m<sup>2</sup> [FIS 07].

Dans notre étude nous avons tenu compte que de l'énergie libre de surface. Les valeurs de cette dernière en fonction de la pureté déterminées expérimentalement et présentées au chapitre III (§. III.3.2.4) ont été utilisées pour déterminer les valeurs du champ de rupture théorique calculées selon l'équation IV.36. Les résultats trouvés sont reportés sur le tableau IV.4 :

**Tableau IV.4** : Valeurs expérimentales de l'énergie de surface et du champ de rupture diélectrique théorique en fonction de la pureté.

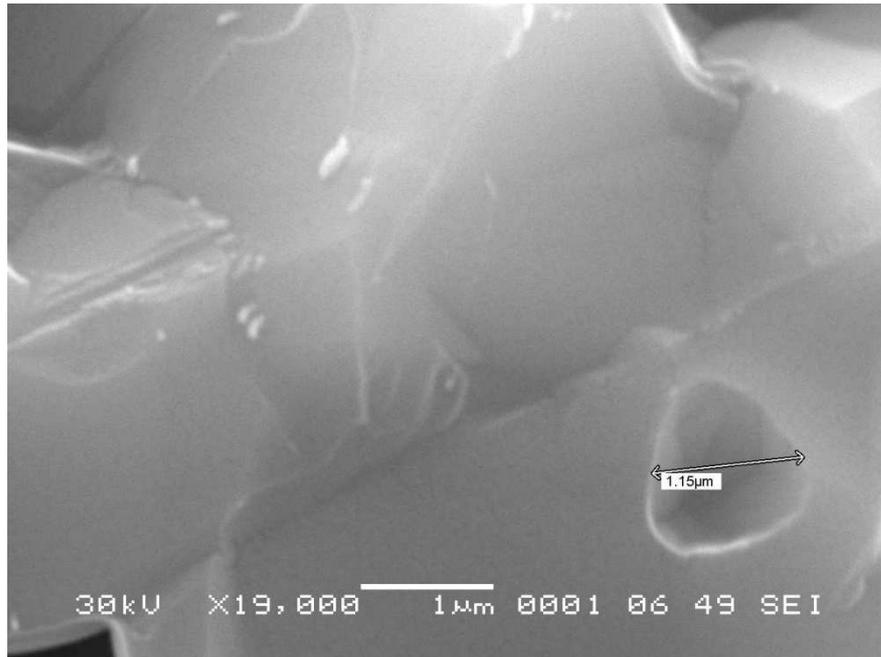
Teneur en alumine %	92	96	99,5
Energie de surface (mJ/m <sup>2</sup> )	22,3	55	40
Champ de rupture calculé (kV/mm)	11	17	14,4

La valeurs du rayon  $r$  du canal de rupture pris en considération dans la détermination du champ de rupture a été estimé à partir des images prise à l'aide du MEB et vaut 10µm. La courbe IV.16 montre une comparaison entre les valeurs du champ de rupture expérimentales et celles calculées pour deux valeurs de la taille du défaut  $r$  en fonction de la pureté.



**Figure IV.16 :** Comparaison entre les champs de rupture expérimentaux et les champs de rupture calculés avec  $r=5\mu\text{m}$  et  $r=10\mu\text{m}$ .

La différence entre les valeurs des champs déterminés expérimentalement et ceux déterminés avec  $r=10\mu\text{m}$  selon l'équation IV.36 est de l'ordre de 30%. Cependant la valeur du rayon est surestimée en raison de la dilatation thermique survenue au passage de l'arc électrique. En prenant  $r$  de l'ordre de  $5\mu\text{m}$  qui représente la taille des grains des alumines étudiées, les résultats théoriques s'approchent des résultats expérimentaux. En effet, comme la rupture diélectrique et la propagation du canal de rupture survient à partir d'un défaut de surface, on peut considérer que  $r$  dans l'équation IV.36 représente la taille de ce défaut. La micrographie IV.4 prise au MEB représente un type de défaut surfacique de l'alumine, il correspond à une cavité d'une dimension de  $1,15\mu\text{m}$ , du même ordre de grandeur qu'ont les défauts de Griffith qui sont à l'origine de la rupture mécanique dans les matériaux fragiles tels que les céramiques. Ce défaut mis en contact avec une électrode est à l'origine de l'intensification du champ électrique et de contrainte mécanique locale. Atteignant une taille critique par la suite, il sera susceptible de déclencher une rupture diélectrique.



**Micrographie IV.4 :** Un exemple de défaut surfacique d'une alumine

Par ailleurs, l'énergie électrique dans la zone correspondant au cratère déterminé précédemment qui est de l'ordre de  $10^{-6}$  J est supérieure à l'énergie de formation du cratère qui est de l'ordre de  $10^{-8}$  J et qui est donnée par le produit de l'énergie de surface par la surface du cratère. Dans le cas où les dimensions du cratère sont très importantes, il faudrait tenir compte de l'énergie de formation du cratère dans l'équation IV.27.

## IV.9. Conclusion

L'objectif de ce chapitre était l'interprétation du processus de rupture diélectrique dans les céramiques à base d'alumine. L'exploitation des résultats obtenues dans le chapitre III et les observations optique et au MEB ont permis de considérer que le claquage diélectrique d'origine électromécanique est le mécanisme le mieux adapté pour décrire la rupture diélectrique de l'alumine.

Pour conforter cette hypothèse, l'étude de la rigidité diélectrique de l'alumine avec 10% d'ajout de zircone a été entreprise. Les résultats ont montré que ce composite présente une meilleure rigidité diélectrique comparée à l'alumine pure. Cette amélioration est attribuée à la transformation de phase de la zircone dans la matrice d'alumine qui survient à l'application

du champ électrique et qui retarde la propagation des fissures. L'apparition du claquage diélectrique est donc liée au comportement et à la propagation des fissures dans le diélectrique.

Par ailleurs, la simulation de la distribution du champ électrique dans le matériau révèle des zones d'intensification du champ électrique engendré par la configuration géométrique des électrodes et les défauts de surface de l'alumine. La formation du cratère prend souvent naissance dans la zone d'intensification du champ électrique à partir d'un défaut microscopique. L'initiation de la rupture étant caractérisé par la formation de ce cratère, l'énergie électrique stockée dans le volume de matière correspondant au cratère et libérée après la formation de ce dernier peut être considérée comme étant l'énergie nécessaire pour l'amorçage de la rupture diélectrique.

Le modèle d'origine électromécanique le mieux adapté pour décrire le processus de rupture diélectrique est celui développé en analogie avec la théorie de rupture fragile de Griffith. La rupture diélectrique n'est possible que si une fissure se propage à travers l'épaisseur et relie les deux électrodes. L'augmentation de l'énergie de surface nécessaire à la création de nouvelle surface (fissure) provient essentiellement de l'énergie électrique qui se libère au fur et mesure que la fissure progresse.



# Conclusion générale

Ce travail de thèse a pour objectif l'étude des propriétés de la conduction électrique dans les céramiques à base d'alumine d'une part et la détermination de la rigidité diélectrique ainsi que l'identification du mécanisme à l'origine de l'initiation de rupture diélectrique d'autre part.

Dans la première étape de cette étude qui consiste à identifier le mécanisme de conduction électrique nous nous sommes intéressés à des céramiques avec des teneurs de 96% et de 99,5% en alumine, de même épaisseur 635  $\mu\text{m}$  et de même taille de grains (5 $\mu\text{m}$ ). Les résultats ont montré que le phénomène de transport dans ces matériaux passe d'un comportement ohmique pour des champs électriques considérés comme étant faibles à un comportement limité par la charge d'espace pour des valeurs de champ électriques supérieures. Une augmentation de la température contribue à l'augmentation de la densité du courant de conduction et anticipe la transition de comportement. La teneur en alumine semble ne pas influencer la densité de courant de conduction pour les températures considérées dans notre étude autrement dit la conduction électrique dans l'alumine n'est pas influencée par les ajouts et les impuretés quand leurs taux varient entre 0.5 et 4% et ceux quelque soit leurs natures. L'alumine étant un matériau non parfait, la conduction électrique dans le domaine limité par la charge d'espace est gouvernée aussi par la densité des pièges présents en son sein. La diffraction X a montré l'inexistence de phase secondaire dans les aluminés considérées pour cette étude, ce qui nous conduit à avancer que ce sont les joints de grains qui constituent la majorité des pièges qui rentrent en jeu dans la conduction électrique dans l'alumine, pour ce qui est des pièges profonds et qui correspondent aux défauts ponctuels, ils sont de densité moins importante dans l'alumine. Plus donc la densité de joints de grains est élevée (tailles des grains petits), plus il y a de porteurs de charge qui sont piégés. La conduction électrique est alors freinée du fait de l'immobilisme de charges piégées. La température contribue à la conduction en réduisant la barrière des pièges et en libérant ainsi les charges de leur piège.

Dans la seconde étape, l'étude expérimentale de la rigidité diélectrique de ces matériaux a été entreprise. Les mesures ont été effectuées en fonction de différents paramètres :

épaisseur (254  $\mu\text{m}$  à 2.5 mm), vitesse de montée en tension (de 0,6 à 20 kV/s) et degré de pureté du matériau (92%, 96% et 99%). L'analyse des résultats avec la statistique de Weibull montre une diminution du champ de claquage  $E_C$  avec l'épaisseur, une variation de ce dernier avec la vitesse de montée. Contrairement aux mesures de conduction, la rigidité diélectrique dépend de la pureté. Elle augmente avec la teneur en alumine quelque soit les constituants des ajouts et des impuretés. La mesure de la rigidité diélectrique de l'alumine monocristalline (saphir) d'épaisseurs 2,54 mm montre que cette dernière présente une rigidité diélectrique faible comparée aux aluminés de pureté 96% et 99.5% de même épaisseurs. En effet, comme pour le phénomène de conduction sous fort champ électrique, les joints de grains qui constituent des pièges aux porteurs de charges ont aussi un rôle important dans la tenue du matériau au claquage diélectrique. Or l'alumine monocristalline ne présentant pas de joints de grains, sa structure est dépourvue d'une quantité considérable de pièges peu profonds, ce qui favorise le phénomène de conduction et par la suite le claquage diélectrique.

L'observation des échantillons claqués au microscope, montre pour chacun d'entre eux la présence d'un canal se terminant par un cratère sur la surface en contact avec l'électrode sphère. La zone de rencontre du canal et du cratère (embouchure) présente de la matière fondue solidifiée et plus on s'éloigne de cette zone plus les grains de la surface du cratère semblent être intacts. En configuration d'électrodes plan/plan, le cratère prend naissance sur l'une ou l'autre des surfaces en contact avec l'électrode avec pratiquement la même probabilité.

La dernière partie de ce travail a été consacrée à la détermination du mécanisme qui est à l'origine de claquage diélectrique. En se référant aux résultats expérimentaux précédents ainsi qu'aux observations post rupture et en comparant les caractéristiques des mesures expérimentales à celles des modèles de claquage diélectrique connus dans la littérature, un modèle de rupture d'origine électromécanique a été proposé. En effet, la variation de la rigidité diélectrique en fonction de la vitesse de montée en tension exclut à priori l'origine électronique du claquage diélectrique et l'incohérence entre la mesure de la conductivité électrique qui reste inchangée en fonction de la pureté et les mesures de rigidité diélectrique qui augmente avec la pureté exclut l'origine thermique du claquage diélectrique.

Pour corrélérer l'intensification du champ électrique et la formation du cratère qui caractérise l'initiation du claquage diélectrique, une simulation à l'aide du logiciel FemLab de la distribution du champ électrique à la rupture dans l'alumine a été entreprise. Les résultats

ont montré qu'en configuration sphère/plan, un champ électrique élevé est repéré au voisinage du point de contact de l'électrode sphère avec la surface de l'alumine avec un ordre de grandeur qui peut atteindre plus de treize fois la valeur du champ électrique de rupture apparent ( $V/d$ ) pour les épaisseurs largement supérieures à la valeur du rayon de courbure de l'électrode sphère. Cette intensification du champ électrique explique la formation du cratère à cet endroit là, en configuration sphère/plan. En configuration plan/plan, l'intensification est produite dans la zone triple jonction (alumine, électrode plane, huile isolante), mais elle est de moindre importance et vu que la distribution des défauts qui peuvent aussi induire une intensification du champ électrique est aléatoire, le cratère peut se former sur l'une ou l'autre surface avec une probabilité pratiquement égale.

Par ailleurs, l'étude de la rigidité diélectrique de la composite alumine zircon a montré le rôle du processus mécanique dans le renforcement diélectrique de l'alumine et par conséquent l'origine électromécanique du claquage diélectrique. En effet, il est connu que l'ajout d'une petite quantité de zircon à l'alumine permet cette dernière d'avoir une meilleure résistance à la rupture. Le mécanisme de renforcement au cours de l'application d'une contrainte mécanique s'opère par une transformation de phase de la zircon de la phase quadratique à la phase monoclinique qui s'accompagne par une augmentation de volume des grains de zircon faisant ainsi un obstacle à la propagation des fissures. Cette transformation de phase est aussi responsable du renforcement diélectrique de l'alumine en retardant la propagation des fissures notamment de la fissure principale reliant les deux électrodes (canal de rupture) qui s'avère être donc à l'origine du claquage diélectrique dans l'alumine.

Le processus de rupture dans les céramiques évolue en trois étapes. La première, considérée comme étant cruciale, consiste en la formation du cratère qui peut être dû à l'intensification locale de contraintes induites par l'application d'un champ électrique. Cette intensification dépend de la forme géométrique des électrodes et de la présence de défauts fragilisant la structure, ce qui entraîne une destruction locale brutale du matériau. La seconde consiste en la propagation, à partir du fond du cratère jusqu'à la surface opposée, d'une fissure et suivie à la fin du processus par la propagation de l'arc électrique le long de la fissure. La propagation de l'arc électrique à travers la fissure cause la fonte de matière tout au long de la fissure conduisant ainsi à la formation du canal de rupture. Le modèle de rupture diélectrique le mieux approprié pour décrire le processus de rupture d'origine électromécanique est celui basé sur le critère de Griffith appliqué à la rupture diélectrique en analogie avec la rupture mécanique des matériaux fragiles. En effet, la rupture diélectrique

survient lorsque la variation de l'énergie électrostatique stockée due à l'application d'un champ électrique est supérieure à celle nécessaire pour la formation de la fissure (canal de rupture) à l'origine de la rupture diélectrique.

Dans ce travail, l'influence de la microstructure sur les propriétés diélectriques notamment sur la rigidité diélectrique des céramiques à base d'alumine a été avérée. Cependant, il serait intéressant d'approfondir les recherches dans ce sens en contrôlant les différents paramètres intrinsèques et extrinsèques intervenant dans les différentes étapes d'élaboration de ces céramiques autrement dit en contrôlant la microstructure. En effet, l'élaboration de substrats isolants compatibles avec l'évolution des technologies de puissance haute tension dépend en grande partie du bon choix du taux et des types d'ajouts ainsi que du mode et de la température de frittage. L'évolution de la conduction électrique d'une part et de la rigidité diélectrique de l'autre reste donc importante à déterminer en fonction de l'évolution de la microstructure.



## Références bibliographiques

- [ALL 06] B. Allard, *Electronique de puissance, Techniques de l'ingénieur*, D3060, 2006.
- [AGN 08] S. Agnel, J. Castellan, H.H. Huy, P. Notingher and A. Toureille. Study of charge accumulation properties of polycrystalline alumina used in power electronics components, Annual Report Conf. on Elect. Ins. Dielec. 2008.
- [AST 04] Standard test method for dielectric breakdown voltage and dielectric breakdown voltage and dielectric strength of solid electrical insulating materials at commercial power frequencies, 2004.
- [AVR 98] D. D. Avrov and al. Electrical conductivity of ceramics of SiC-AlN, SiC-BeO and Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in the temperature range 300-1800 K, IEEE, 1998.
- [BAL 96] B. J. Baliga, Trends in power semiconductor devices, IEEE Transaction on Electronic Devices, Vol. 43, No. 10, 1996.
- [BER 00] S. Bernet, Recent developments of high power converters for industry and traction application, IEE Transaction on Power Electronics, Vol, 15, No 6, 2000.
- [BLA 01] G. Blaise, Charge localization and transport in disordered dielectric materials, J. Elect. 50, 2001.
- [BLA 94] G. Blaise, Space charge physics and the breakdown process, J. Appl. Phys. 77 (7), 1995.
- [BLO 97] P. W. M. Blom, M. J. M. de Jong, and M. G. van Munster. Electric-field and temperature dependence of the hole mobility in poly,*p*-phenylene vinylene. Phys. Rev. B, Vol. 55, No. 2, 1997.
- [BRE 03] F. Breit, Contribution à l'intégration hybride de puissance : étude de l'environnement diélectrique des semiconducteurs, thèse de doctorat, Université Paul Sabatier, Toulouse, 2003.
- [BRE 01] F. Breit, D. Malec and T. Lebey, Investigation on DC conductivity of AlN, C.E.I.D.P, 2001.
- [BRO 92] M. Brousseau, Propriétés électroniques, Ed. Masson, Paris, 1992.
- [BUI 77] H. D. Bui, Mécanique de la rupture fragile, Ed. Masson, Paris, 1977.
- [CHA 08] P. Chapas et M. Debruyne, Composant de l'électronique en traction ferroviaire, Techniques de l'ingénieur, D5530, 2008.
- [CHA 93] C. Chauvet and C. Laurent, Weibull statistics in short-term dielectric breakdown of thin polyethylene films, IEEE Trans. Elec. Ins. 28, N° 1, 1993.
- [CLA 62] FM Clark, Insulating materials for design and engineering materials, John Wiley and Sons, Inc. New-York, 1962.
- [COO 08] CoorsTek, Ceramic properties standard, F08018510-1042 Rev. J, 2008.

- [COE 93] R. Coelho et B. Aladenize, Les diélectriques : Propriétés diélectriques des matériaux isolants, Traité des nouvelles technologies, Ed. Hermes, Paris, 1993.
- [DEV 04] S. Deville, Etude des mécanismes de renforcement et de dégradation des céramiques biomédicales à base de zircon, Inst. Nat. Sci. Appl. Lyon, 2004.
- [DUP 06] M. L Dupont, Thèse de doctorat, Contribution à l'étude de la durée de vie des assemblages dans des environnements haute température avec des cycles thermiques de haute amplitude, ENS Cachan, France, 2006.
- [ELA 03] A. Elasser, M. H. Kheraluwala, M. Ghezzi, R. L. Steigerwald, N. A. Evers, J. Kretchmer and T. P. Chow. A comparative evaluation of new silicon carbide diodes and state of the art silicon diodes for power electronic applications, IEEE Transactions on industry application, Vol. 39, No. 4, 2003.
- [FAB 04] J. H. Fabian, S. Hartmann and A. Hamidi. Partial discharge failure analysis of AlN Substrates for IGBT Modules, Microelectronics reliability, 44, 2004.
- [FIS07] A. C. Fischer-Cripps, Introduction to contact mechanics, Second Edition, Springer Science-business Media, 2007.
- [FOT 90] J. C. Fothergill, Estimating the cumulative probability of failure data points to be plotted on Weibull and other probability paper, IEEE Trans. Elect. Ins. Vol. 25 No. 3, 1990.
- [FOU 01] R. Fournié, Diélectriques : Bases théorique technique de l'ingénieur, Traité Génie électrique, D2300, 2001.
- [FRE 89] S. W. Freiman and R. C. Pohanka, Review of mechanically related failures of ceramic capacitor materials, J. Am. Ceram. Soc. 72, 1989.
- [FRO 39] H. Fröhlich , On the theory of dielectric breakdown in solids, Proc. Roy. Soc. Lon. Series A, Math. And Phys. Sci. Vol. 172, No. 948, 1939.
- [GUT 06] D. Gutknecht, Elaboration et caractérisation de micro et nano composites alumina-zircon, Thèse de doctorat, Univ. de Lyon, 2006.
- [HAU 96] F. JM Haussonne, Céramique pour composants électronique, Techniques de l'ingénieur, Traité Electronique, E 1820, 1996.
- [HIK 82] M. Hikita, Thermal breakdown process in polymeric insulating materials, A Dissertation for the degree of doctor of engineering, Nagoya university, 1982.
- [INU 82] Y. Inuishi, Effect of space charge and structure on breakdown of liquid and solid, IEEE Trans. Elect. Ins. Vol. EI-17 No. 6, 1982.
- [JOH 71] K. L. Johnson, K. Kendall, A. D. Roberts, Surface energy and the contact of elastic solids, Proc. Roy. Soc. Lond. 324, N° 1558, 1971.
- [KOL 00] J. Kolodzey, Electrical conduction and dielectric breakdown in aluminium oxide insulators on silicon, IEEE Trans. Electro. Devices, Vol. 47, No 1, 2000.

- [KUR 85] Y. Kurokawa, K. Utsumi, H. Takamizawa, T. Kamata and S. Noguchi, AlN Substrates with high thermal conductivity, IEEE Trans. Comp. Hyb. And Manufa. Techno. Vol. CHMT-8, No 2, 1985.
- [LAG 98] K. P. D. Lagerlöf and R. W. Grimes, The defect Chemistry of sapphire, Acta mater. Vol. 46, No 16, 1998.
- [LAU 99] C. Laurent, Diélectriques solides et charge d'espace, technique de l'ingénieur, Traité Génie électrique, D2305, 1999.
- [LAW 93] B. Lawn, Fracture of brittle solids, Cambridge Univ. Press, 1993.
- [LEB 03] T. Lebey, D. Malec, V. Bley, F. Breit and E. Dutarde. Contribution to the dimensioning of the different insulating materials used in high voltage power electronics module manufacturing, IEEE Int. Conf. On PEDS, 2003.
- [LEV 98] I. Levin and D. Brandon, Metastable alumina polymorphs : Crystal structures and transition sequences, J. Am. Ceram. Soc, 81, 1998.
- [LI 06] C. R. Li, L. J. Ding, J. Z. Lv, Y. P. Tu and Y. C. Cheng. The relation of trap distribution of alumina with surface flashover performance in vacuum, IEEE Trans. Diel. Elect. Ins. Vol. 13, N° 1, 2006.
- [LIE 01] J. Liebault, J. Vallayer, D. Goeuriot, D. Treheux and F. Thevenot, How trapping can explain the dielectric breakdown performance of alumina ceramics, J. Europ. Ceram. Societ. Vol. 21, 3, 2001.
- [LIN 07] A. Lindemann, Properties of direct Aluminium bonded substrates for power semiconductor components, IEEE Trans. On Power Electronics, 2007.
- [LRC 08] LRCB, Angles de raccordement et énergie de surface, Laboratoires de recherche et de chimie, Bienne, 2008.
- [MAL 05] D. Malec, V. Bley, T. Lebey, F. Talbi and F. Lalam. Investigation on dielectric breakdown of ceramics materials, Annual Report C.E.I.D.P 2005.
- [MAL 02] D. Malec, Habilitation à diriger des recherches, université Toulouse, 2002.
- [MCM 87] R. M. McMeeking, On mechanical stresses at cracks in dielectrics with application to dielectric breakdown, J. Appl. Phys. 62, 1987.
- [MEN 97] C. Menguy, Mesure de caractéristique des matériaux isolants solides, Technique de l'ingénieur, Traité génie électrique, D2310-12, 1997.
- [MIC 77] H. B. Michaelson, The work function of the elements and its periodicity, J. Appl. Phys. Vol. 48, N° 11, 1977.
- [MUR 85] H. Murata, Seung Chul Choi, Kunihito Koumoto and Hiroaki Yanagida. High temperature electrical breakdown in single and polycrystalline MgO, J. Mat. Sci. 20, 1985.
- [NAK 07] A. Nakagawa, Y. Kawaguchi and K. Nakamura. Achieving material limit characteristics in silicon power devices, IEEE Conf, 2007.

- [OWA 90] I. O. Owate and R. Freer, The electrical properties of some cordierite glass ceramics in the system, *J. Mat. Sci.* 25, 1990.
- [OWA 92a] I. O. Owate, Ac breakdown characteristics of ceramic materials, *J. Appl. Phys.* Vol. 72 No. 6, 1992.
- [OWA 92b] I. O. Owate and R. Freer, Dielectric breakdown of ceramics and glass ceramics, *IEEE Conf. Proc.* 1992.
- [PEN 97] S. J. Penn, N. M. Alford, A. Templeton, X. Wang, M. Xu, M. Reece and K. Schrapel. Effect of porosity and grain size on the microwave dielectric properties of sintered alumina, *J. of the American Ceramic society*, 1997.
- [PIE 08] S. Pietranico, S. Pommier, S. Lefebvre et Z. Khatir. Fatigue et rupture fragile des substrats DCB pour application haute temperature, XIIème colloque EPF, 2008.
- [QUI 07] G. D. Quin, *Fractography of ceramics and glasses, special publications, NIST*, 2007.
- [REU 99] T. Ruemenapp and D. Peier, Dielectric breakdown in aluminium nitride, *High Voltage Engineering Symposium*, 1999.
- [RHO 98] Rhodorsil OIL 604 V50 used in submerged transformers, *Technical data sheet*, 1998.
- [SAL 03] C. Sallé, P. Grosseau, B. Guilhot, P. Iacconi, M. Benabdesselam and G. Fantozzi. Detection of tetragonal zirconia in alumina-zirconia powders by thermoluminescence, *J. EUR. Ceram. Soc.* 23, 2003.
- [SAL 05] C. Sallé, Effets du Zirconium, du Manganèse et du Titane sur la thermoluminescence et la réactivité de l'alumine  $\alpha$ , *Thèse de doctorat, Université de Saint-Etienne*, 2003.
- [SCO 75] H. G. Scott, Phase relationships in zirconia-yttria system, *J. Mat. Scien.* 10, 1975.
- [SEI 49] F. Seitz, On the theory of electron multiplication in crystals, *Physical review*, Vol. 76, No. 9, 1949.
- [SEG 78] Y. Segui, Contribution à l'étude de mécanismes de conduction dans les films minces de polymère, *Thèse de doctorat ès sciences physiques, Univ. Toulouse*, 1978.
- [SEG 00] Y. Segui, Courant de conduction, *Technique de l'ingénieur, Traité Génie électrique*, D 2301, 2000.
- [SHI 89] B. Shin and H. G. Kim, Dielectric breakdown and partial discharge in BaTiO<sub>3</sub> ceramics, *Proc. 3<sup>rd</sup>. Int. Conf. Norway*, 1989.
- [SIM 94] N. J Simon, Cryogenic properties of inorganic insulating materials for ITER Magnets, *A Review*, 1994.
- [SOM 07] S. Sombel, Etude du comportement sous haute température de matériaux polyimides en vue de la passivation de composant de puissance à semi-conducteurs grand gap, *Thèse université Paul Sabatier, Toulouse*, 2007
- [STA 55] K. H. Stark and C. G. Garton, *Nature*, 176, 1955.
- [STO 79] G. C. Stone and J. F. Lawless, The application of Weibull statistics to insulation aging tests, *IEEE Transactions on Electrical Insulation* Vol. EI-14 No. 5, 1979.

- [STO 86] G.C. Stone, Personal computer software to analyse extreme-value and Weibull statistical data, 1986.
- [STR 73] W. H. Strehlow and E. L. Cook, Compilation of energy band gaps in elemental and binary compound semiconductors and insulators, *J. Phys. Chem. Ref. Data*, Vol. 2, No. 1, 1973.
- [TOU 05] M. Touzin, these de doctorat, Transport des charges dans l'alumine polycrystalline, Ecole national supérieures des mines de Saint-Etienne, 2005.
- [TOU 07] M. Touzin, D. Goeuriot, H. J. Fitting, C. Guerret-Piécourt, D. Juvé and D. Tréheux. Relationships between dielectric breakdown resistance and charge transport in alumina materials-effects of the microstructure, *J. Eur. Ceram. Soc.* 2007.
- [TUN 96] T. Tunkasiri, G. Rujijanagul, Dielectric strength of fine grained barium titanate ceramics, *J. Mat. Sci. Lett.*, 15, 1996.
- [VAN 06] H. Vang, Optimisation des étapes technologiques pour la fabrication de composants de puissance en carbure de silicium, Thèse de doctorat, Institut national des sciences appliquées de Lyon, 2006.
- [VIL 04] R. Vila, M. González, M. T. Hernández and J. Mollál. The role of C-impurities in alumina dielectrics, *J. of the European Ceramic Society*, 24, 2004.
- [VON 37] A. Von Hippel, Electric breakdown of solid and liquid insulators, *J. Appl. Phys.* Vol. 8, 1937.
- [VOR 05] G. A. Vorobev, S. G. Ekhanin and N. S. Nesmelov. Electrical breakdown in solid dielectrics, *Phys. Sol. Stat.* Vol. 47, No 6, 2005.
- [WAC 09] J. B. Wachtman, W. R. Cannon and M. J. Matthewson. Mechanical properties of ceramics. 2<sup>nd</sup> Ed. Wiley and Sons Inc. 2009.
- [YOS 81] M Yoshimura and H. K. Bowen. Electrical breakdown strength of alumina at high temperature, *J. Am. Ceram. Soc.* 1981.
- [ZEA 08a] A. Zéanh, O. Dalverny, M. Karama, E. Woirgard, S. Azzopardi, A. Bouzourene, J. Casutt et M. Mermet-Guyennet. Proposition of IGBT modules assembling technologies for aeronautical applications, International Conference Investigation of Power Electronics Systems (CIPS), Germany, 2008.
- [ZEA 08b] A. Zéanh, O. Dalverny, E. Woirgard, S. Azzopardi, M. Karama, A. Bouzourene, J. Casutt et M. Mermet-Guyennet. Fiabilité des substrats en AlN utilisés dans les modules IGBT en environnement Aéronautique, XII Colloque EPF, 2008.
- [ZEB 97] N. Zebouchi, Corrélation entre la charge d'espace et la rupture diélectrique des isolants solides. Application aux matériaux pour câbles d'énergie. Thèse de doctorat, Univ. Paul Sabatier de Toulouse, 1997.
- [ZEL 84a] H. R. Zeller and W. R. Schneider, Electrofracture mechanics of dielectric aging, *J. Appl. Phys.* 56, 1984.

[ZEL 84b] H. R. Zeller, T. Hibma and P. Pfluger, Electrofracture mechanics of dielectric aging, Annual Report CEIDP, 1984.

[ZEL 87] H. R. Zeller, Breakdown and prebreakdown phenomena in solid dielectrics, IEEE Transaction on Electrical Insulation Vol. EI-22, No. 2, 1987.

[ZER 08] K. Zerbout, Stability of trapped charges in sapphire and alumina ceramics. Evaluation by secondary electron emission. J. Appl. Phys. 103, 2008.

## **Etude des phénomènes de conduction et de rupture diélectrique dans les céramiques à haute teneur en alumine**

Ce travail de thèse porte sur l'étude du comportement diélectrique des céramiques à haute teneur en alumine, utilisées comme substrats isolants dans les modules de puissance. Deux aspects décrivant le comportement diélectrique des isolants solides sont traités dans cette étude. Le premier est l'étude de la conduction électrique sous haut champ en fonction de la tension, la température et la pureté des céramiques. Le deuxième est l'étude de la rupture diélectrique en alternatif à 50 Hz en fonction de l'épaisseur, la vitesse de montée en tension et la pureté du matériau. Par ailleurs, ce travail vise aussi à comprendre et à interpréter le mécanisme de claquage diélectrique dans ces matériaux. Les résultats expérimentaux de la conduction mettent en évidence une transition d'un comportement ohmique à un comportement limité par la charge d'espace (SCLC) pour les champs forts indiquant ainsi que cette dernière peut jouer un rôle à l'approche de la rupture. L'analyse de ces résultats montre que dans la région (SCLC) les pièges actifs sont les pièges discrets et peu profonds. Les mesures de la rigidité diélectrique montrent que celle-ci diminue avec l'épaisseur, augmente avec la pureté et la vitesse de montée en tension. Au vu des analyses des différents résultats et des investigations expérimentales, le mécanisme le mieux adapté pour décrire la rupture diélectrique dans ces matériaux est basée sur un modèle d'origine électromécanique.

Mots clefs : Alumine, conduction électrique, rigidité diélectrique, mécanisme de claquage

## **Study of conduction and dielectric failure phenomena in high-alumina ceramics**

This thesis is devoted to the study of dielectric ceramics with high content of alumina, used as insulating substrate in the power modules. Two aspects describing the dielectric behavior of insulating solids have been treated in this study. The first is the study of electrical conduction at high field as a function of voltage, temperature and purity ceramics. The second concerns the study of dielectric breakdown in alternating 50 Hz depending on the thickness, the voltage rise and the purity of the material. Furthermore, this work also aims to understand and interpret the mechanism of dielectric breakdown in these materials. The experimental results for conduction show a transition from ohmic behavior to a behavior limited by the space charge (SCLC) for high electric fields indicating that it may play a role in the approach of the rupture. Analysis of these results shows that in the region (SCLC) active traps are discrete and shallow traps. The measurements of dielectric strength shows that it decreases with the thickness, increases with the purity and the rate of the voltage rise. In view of the results and the analysis of experimental investigations, the mechanism best suited to describe the dielectric breakdown in these materials is based on an electromechanical one.

Key words: Alumina, electrical conduction, dielectric strength, breakdown mechanism.