

Conductivité électrique de polymères composites à forte permittivité, analyse sous fort champ électrique

Louis Lévêque^{1,2}, Sombel Diahm^{1,2}, Zarel Valdez-Nava^{1,2}, Lionel Laudebat^{1,2,3} and Thierry Lebey^{1,2}

¹ Université de Toulouse ; UPS, INPT ; LAPLACE (Laboratoire Plasma et Conversion d'Énergie) ; 118 route de Narbonne, F-31062 Toulouse cedex 9, France.

² CNRS ; LAPLACE ; F-31062 Toulouse, France.

³ Centre Universitaire Champollion ; place de Verdun 81012 Albi, France.

RESUME - Ce papier présente une étude des propriétés diélectriques de matériaux composites à forte permittivité composé d'une matrice époxy, chargés en particules de titanate de strontium (SrTiO_3) et en de titanate de baryum (BaTiO_3) (d'environ 1 μm de diamètre). L'objectif est de comparer la conductivité DC (σ_{DC}) de ces composites à partir des mesures de spectroscopie diélectrique, dans une gamme de fréquences entre 10^{-4} et 10^6 Hz, et la conductivité σ_{DC} obtenue dans le domaine temporel, pour des courants de conduction allant jusqu'à 10 000 s. Les deux types de composite seront comparés en fonction du taux de chargement jusqu'à 50 %vol. en particules. De plus, des mesures de conductivité AC σ_{AC} en température (jusqu'à 100 °C) et de conductivité DC σ_{DC} sous fort champ électrique (jusqu'à 10 kV/mm) seront présentées.

Mots-clés—Epoxy/ SrTiO_3 , Epoxy/ BaTiO_3 , Composites, Conductivité électrique

1. INTRODUCTION

L'émergence de nouveaux composants semi-conducteurs (SiC) ou la montée en tension des composants classiques (Si) en électronique de puissance imposent des tensions et des températures de fonctionnement des modules de puissance plus élevées. Aujourd'hui les améliorations dans conversion de l'énergie électrique répondent au besoin de l'intégration en électrique de puissance, c'est-à-dire un volume et des masses plus faibles. Le packaging des modules de puissance est donc plus contraint. Cela induit le besoin d'utiliser des nouveaux matériaux de packaging en raison des limitations des matériaux existants. Les conséquences en terme de contraintes électriques se localisent dans les zones de renforcement du champ électrique comme au niveau des points triples, atteignant parfois le seuil d'apparition des décharges partielles (appelé PDIV « Partial Discharge Inception Voltage ») voire même le champ de rupture de l'isolant. Le point triple correspond à une région de trois matériaux qui se situe dans le cas des modules de puissance au niveau de l'intersection entre la céramique (Al_2O_3 , AlN), les métallisations en cuivre et l'encapsulation (par exemple gel silicone, époxy). Depuis quelques années, des efforts de recherche sont effectués pour réduire les renforcements locaux de champ électrique autour de ces points triples [1]. L'utilisation de matériaux souvent appelés gradateurs de champ (field grading materials) permet la réduction des contraintes électriques en écartant les équipotentielles autour des zones de renforcements du champ électrique. Plusieurs approches ont été étudiées comme

l'utilisation de vernis composés de résine isolante et de particules (SiC ou ZnO) [2,3], ou de matériaux chargés de particules à forte permittivité [4,5,6]. Par exemple, une étude a montré une amélioration de 60 % du PDIV dans des modules de puissance IGBT encapsulés avec du gel silicone avec 15 %vol. de BaTiO_3 par rapport au gel non chargé [7]. Cependant, à notre connaissance les propriétés diélectriques de ces matériaux polymères composites à forte permittivité dans une large gamme de champs électriques sont mal connues.

Dans une première partie, nous allons définir les techniques de mesures électriques des conductivités utilisées en régime AC et DC. Nous exposerons ensuite les résultats des mesures de la conductivité électrique DC en fonction du champ électrique, pour différents taux de chargement des composites époxy/ SrTiO_3 et époxy/ BaTiO_3 . Puis, nous nous intéresserons aux mesures de conductivité électrique AC à 20 °C et 100 °C, pour plusieurs taux de chargement des deux diélectriques. Enfin, nous comparerons les deux mesures de conductivité en régime DC et AC.

2. TECHNIQUES DE MESURES ELECTRIQUES

2.1. Conductivité électrique en régime AC

Les mesures de conductivité en régime AC et DC ont été effectuées sur des échantillons métallisés par pulvérisation cathodique (sputtering) d'or ($\Phi=2,5$ cm) avec une électrode de garde (Fig.1).

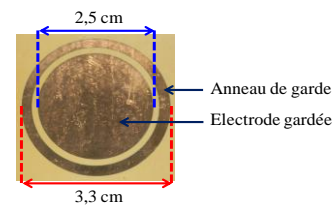


Fig.1 - Echantillon métallisé à l'or au sputtering

La conductivité AC est calculée à partir des pertes diélectriques associées à la partie imaginaire ϵ'' de la permittivité complexe, selon la relation suivante :

$$\sigma_{\text{AC}} = \epsilon'' \omega \epsilon_0 \quad (1)$$

où $\epsilon_0=8,845 \times 10^{-12}$ F/m est la permittivité du vide et ω la pulsation électrique.

La conductivité AC à basse fréquence correspond à la conductivité DC lorsque l'on observe un plateau horizontal. Dans ce cas, la conductivité AC est soit quasiment ou soit entièrement indépendante de la fréquence. Ce plateau de conductivité DC se déplace vers les plus hautes fréquences lorsque la température augmente [8,9].

2.2. Conductivité électrique en régime DC

La conductivité DC a été obtenue sous champ DC en mesurant les courants de polarisation dans le temps. Un électromètre (Keithley 6517A) a été utilisé pour les mesures de courants à température ambiante des composites. Les mesures ont été réalisées dans un liquide isolant. Les échantillons sont polarisés puis dépolarisés 10 000 s sous tension DC (entre 1 kV et 10 kV) à l'aide d'une source de tension. La conductivité électrique volumique (S/m) est donnée par la relation :

$$\sigma_{DC} = \frac{J_C}{E} \quad (2)$$

où J_C est la densité de courant de conduction (A/m²) mesurées à 10⁴ s, et E est le champ électrique appliqué (V/m).

3. RESULTATS PRELIMINAIRES

Dans un premier temps, une analyse de la dépendance temporelle de la conductivité DC d'un des deux composites (époxy/SrTiO₃) à différents champs électriques de 1 kV/mm à 10 kV/mm est présentée (Fig.2). On observe que la conductivité augmente avec l'augmentation du champ électrique. On remarque que la conductivité des composites époxy/SrTiO₃ et époxy/BaTiO₃ est supérieure à l'époxy pour un taux de chargement supérieure à 20 %vol. pour les deux matériaux. On obtient une conductivité inférieure à celle de l'époxy pour les composites époxy/SrTiO₃ et époxy/BaTiO₃ chargés à 10 % vol. résultat en adéquation avec les résultats de Nelson *et al.* [10] qui a montré qu'à 5 %vol. de microparticules de TiO₂ dans une matrice époxy, la conductivité électrique est plus petite que celle de l'époxy. Nous pouvons observer que la conductivité varie d'une décade entre le matériau chargé à 10 %vol. et le plus haut taux de chargement pour les deux composites à matrice époxy.

La dépendance fréquentielle de la conductivité AC σ_{AC} du composite époxy/SrTiO₃ chargé à 20 % vol. à 20 °C et 100 °C a été étudiée, les résultats sont présentés figure 3. Nous observons sur la figure 3 que la conductivité AC σ_{AC} augmente en fonction de la température pour les basses fréquences (inférieures à 1 kHz). Au-dessus de 1 kHz, les conductivités σ_{AC} à 20 °C et 100 °C sont très proches. On remarque qu'aux basses fréquences la conductivité σ_{AC} continue de diminuer pour probablement tendre vers la formation du plateau horizontale à haute température (100 °C). La conductivité σ_{AC} devient alors indépendante de la fréquence.

Dans l'article final, tous les résultats seront présentés et discutés du point de vue de la conductivité DC et une comparaison de l'impact de ces deux particules à forte permittivité sera effectuée.

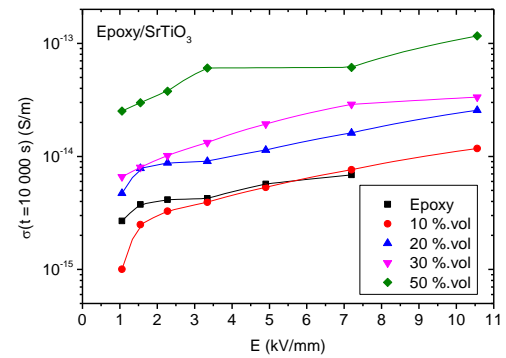


Fig.2 - Conductivité DC en fonction du champ électrique pour différents taux de chargement pour époxy/SrTiO₃ à 20 °C

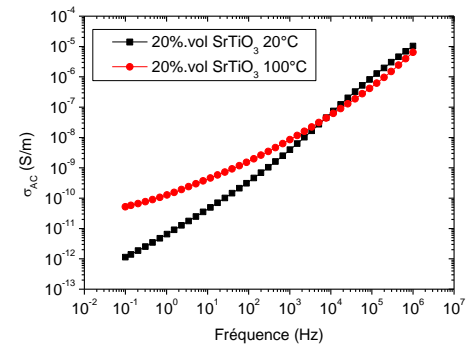


Fig.3 - Conductivité AC en fonction de la fréquence pour époxy/SrTiO₃ à 20 % vol., à 20 °C et 100 °C

4. REFERENCES

- [1] Mitic, G.; Licht, T.; Lefranc, G., "IGBT module technology with high partial discharge resistance," *Industry Applications Conference, 2001. Thirty-Sixth IAS Annual Meeting. Conference Record of the 2001 IEEE*, vol.3, no., pp.1899,1904 vol.3, Sept. 30 2001-Oct. 4 2001
- [2] C. Duchesne, *Contribution à l'étude de la gradation de potentiel dans les modules de puissance haute tension*, Thèse de Doctorat de l'Université Paul Sabatier, Toulouse, 2009
- [3] Donzel, L.; Schuderer, J., "Nonlinear resistive electric field control for power electronic modules," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol.19, no.3, pp.955,959, June 2012
- [4] Sangyong Lee; Jin-Gul Hyun; Hyungsoo Kim; Kyung-Wook Paik, "A Study on Dielectric Constants of Epoxy/SrTiO₃ Composite for Embedded Capacitor Films (ECFs)," *Advanced Packaging, IEEE Transactions on*, vol.30, no.3, pp.428,433, Aug. 2007
- [5] Kyung-Wook Paik; Jin-Gul Hyun; Sangyong Lee; Kyung-Woon Jang, "Epoxy/BaTiO₃ (SrTiO₃) Composite Films and Pastes For High Dielectric Constant and Low Tolerance Embedded Capacitors in Organic Substrates," *Electronics System Integration Technology Conference, 2006. 1st*, vol.2, no., pp.794,801, 5-7 Sept. 2006
- [6] Choi, H. D.; Shim, H. W.; Cho, K. Y.; Lee, H. J.; Park, C. S. & Yoon, H. G. Electromagnetic and electromagnetic wave-absorbing properties of the SrTiO₃-Epoxy composite *Journal of Applied Polymer Science, John Wiley & Sons, Inc.*, 1999, 72, 75-83
- [7] Ningyan Wang; Cotton, I.; Robertson, J.; Follmann, S.; Evans, K.; Newcombe, D., "Partial discharge control in a power electronic module using high permittivity non-linear dielectrics," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol.17, no.4, pp.1319,1326, August 2010
- [8] Jonscher, A. K. Dielectric relaxation in solids *Journal of Physics D: Applied Physics*, 1999, 32, R57
- [9] Neagu, R. M.; Neagu, E.; Bonanos, N. & Pissis, P. Electrical conductivity studies in nylon 11 *Journal of Applied Physics*, 2000, 88, 6669-6677
- [10] Nelson, J. K. & Hu, Y.; Nanocomposite dielectrics-properties and implications, *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2005, 38, 21