



HAL
open science

Sur l'amélioration des propriétés diélectriques de films polyimides par la nanostructuration

Sombel Diahm, François Saysouk, Marie-Laure Locatelli, Thierry Lebey

► **To cite this version:**

Sombel Diahm, François Saysouk, Marie-Laure Locatelli, Thierry Lebey. Sur l'amélioration des propriétés diélectriques de films polyimides par la nanostructuration. Symposium de Genie Electrique, Jun 2016, Grenoble, France. hal-01361627

HAL Id: hal-01361627

<https://hal.science/hal-01361627>

Submitted on 7 Sep 2016

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

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

Sur l'amélioration des propriétés diélectriques de films polyimides par la nanostructuration

Sombel Diahm, François Saysouk, Marie-Laure Locatelli et Thierry Lebey

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

RESUME—Cet article fait une synthèse des travaux amorcés au LAPLACE depuis 2009 dans le domaine des nanodiélectriques à base polymère et cela en vue du développement d'isolants minces à propriétés électriques fortement renforcées. Nous illustrons l'intérêt de ce domaine de recherches en présentant l'impact d'une nanostructuration avec des nanoparticules nitrurées sur un polymère thermostable largement utilisé en électronique : les films de polyimide. Sont présentés à la fois l'effet des paramètres des procédés d'élaboration (dispersion des nanoparticules, fonctionnalisation de surface, etc.) ainsi que l'influence de la nanostructuration des films (effet de la taille et de la nature des nanoparticules) sur les propriétés diélectriques sous faible et fort champ et dans une gamme de températures larges (jusqu'à 350 °C).

Mots-clés—*Nanodiélectriques, Nanocomposites, Polyimide, Nanoparticules, Isolation électrique, Propriétés diélectriques.*

1. INTRODUCTION

Le polyimide (PI) est utilisé aujourd'hui en tant qu'isolant de passivation des composants semi-conducteurs en microélectronique et électronique de puissance, comme couche d'isolation intermétallique, vernis d'émail en électrotechnique et substrat isolant pour les circuits imprimés. Cela est dû à ses excellentes propriétés intrinsèques telles qu'une bonne stabilité thermique, de bonnes propriétés électriques et mécaniques et des procédés de mise en œuvre compatibles avec de nombreuses applications.

Cependant, avec l'augmentation des niveaux de performances demandés aux systèmes de conversion d'énergie électrique et nécessaire pour répondre aux nouveaux besoins sociétaux en matière d'énergie, de nombreux matériaux polymères (dont les polyimides) risquent de devenir limitant en termes d'isolation électrique. En effet, l'intégration des systèmes électriques ou leur montée en tension vont dans le sens d'une augmentation des contraintes de champ électrique, voire dans certains cas de température, que doivent supporter ces matériaux. Ainsi, il a pu déjà être montré que pour des champs $>10^7$ V/m ou pour des températures >100 °C [1-4], les films PI étaient soumis à des phénomènes d'injection de charges non négligeables et à la formation de charge d'espace favorisant d'intenses renforcements de champ électrique interne les conduisant à la rupture diélectrique.

Un moyen original a été identifié et est étudié depuis 2009 au LAPLACE de Toulouse afin de contrôler de tels phénomènes d'injection et de transport de charges dans les films de PI. Il consiste à introduire des nanoparticules dans le polymère en voie liquide, de contrôler leur état de dispersion et d'optimiser les procédés d'élaboration de façon à développer des effets dits « *nanodiélectriques* » au sein de la matrice organique.

A ce jour de plus en plus d'études sont menées dans le domaine des nanodiélectriques. Malheureusement, les résultats publiés ne montrent généralement que peu d'effets (voire des effets négatifs) sur les propriétés diélectriques des polymères modifiés. Cela s'explique souvent par des problèmes de dispersion (ou de compatibilité) des nanoparticules dans la matrice polymère. La formation d'agrégats de taille micrométrique est souvent incriminée au niveau de la dégradation des propriétés diélectriques des nanocomposites. A contrario, il a pu être montré que le contrôle de la dispersion pouvait entraîner une forte amélioration des propriétés diélectriques à la fois sur le champ de rupture, la résistivité, la quantité de charge d'espace ou la tenue aux décharges partielles. Jusqu'à présent, et de façon très surprenante au vu du potentiel applicatif, très peu de travaux ont été dédiés à l'étude des propriétés diélectriques des PI nanocomposites chargés en nanoparticules de silice (SiO_2) ou d'alumine (Al_2O_3) [5-9]. De plus, ils ont tous été menés à température ambiante (ou au voisinage) et n'ont montré que peu d'effets. Une mauvaise qualité de dispersion là aussi souvent été mise en cause.

Aujourd'hui les nanoparticules à base de nitrure telles que le nitrure de bore (BN), le nitrure d'aluminium (AlN) et le nitrure de silicium (Si_3N_4) apparaissent comme une alternative très prometteuse aux nanoparticules d'oxyde métallique. Elles présentent en effet un meilleur compromis entre les propriétés d'isolation électrique et de conduction thermique. Il est aussi possible de les obtenir en taille, forme et cristallographie différentes grâce aux récents progrès faits au niveau des procédés de synthèse.

Dans cet article, nous présentons une synthèse de nos résultats obtenus dans le cas de films polyimides nanochargés en particules nitrurées (BN, AlN, Si_3N_4). Ce travail porte à la fois sur l'optimisation des procédés de synthèse des nanocomposites (dispersion des nanoparticules, fonctionnalisation de surface, etc.) et sur la caractérisation de

plusieurs propriétés diélectriques sous faible et fort champ (permittivité, facteur de pertes, conductivité DC, champ de rupture) et dans une large gamme de températures jusqu'à 350 °C [10-12]. Une analyse des mécanismes physiques mis en jeu permettra de mieux comprendre l'origine des importantes améliorations des propriétés observées.

2. PARTIE EXPERIMENTALE

2.1. Matériaux

La résine PI utilisée est formée d'un biphenyldianhydride et d'un *p*-phenylenediamine (BPDA-PDA). Ces précurseurs sont dissouts dans un solvant polaire, le N-méthyl-2-pyrrolidone (NMP), pour former une solution liquide d'acide polyamique (PAA).

Quatre différents lots de nanoparticules de BN ont été utilisés (cf. Fig. 1). Les nanoparticules notées *h*-BN, *t*-BN et *w*-BN réfèrent respectivement aux formes cristallographiques hexagonale, turbostatique et wurtzite du BN. Les nanoparticules *h*-BN et *w*-BN ont été approvisionnées commercialement alors que les nanoparticules *t*-BN ont été synthétisées au Laboratoire des Multimatériaux et Interfaces (LMI) à Lyon en collaboration avec le Laboratoire Sciences des Procédés Céramiques et de Traitements de Surface (SPCTS) à Limoges [13]. Leur diamètre moyen varie entre 120 nm et 35 nm.

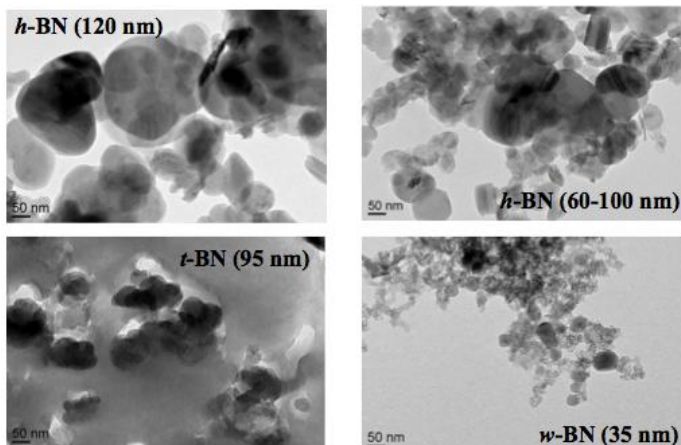


Fig. 1. Différents types de nanoparticules de BN utilisées dans cette étude.

Par ailleurs, des nanoparticules d'AlN et de Si₃N₄ ayant respectivement des diamètres moyens de 40 nm et 30 nm ont été utilisées à titre comparatif (cf. Fig. 2).

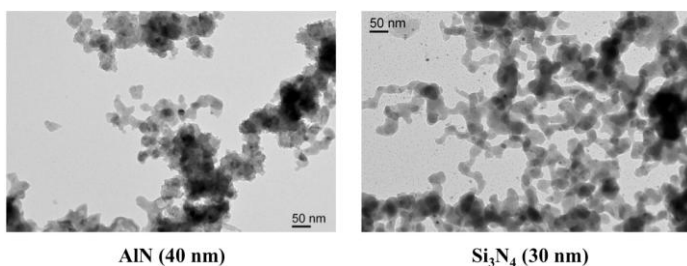


Fig. 2. Différents types de nanoparticules d'AlN et de Si₃N₄ utilisées.

2.2. Procédé d'élaboration des films PI nanocomposites

Nous ne rappelons ici que le schéma général présentant les principales étapes du procédé d'élaboration des films de PI nanocomposites (cf. Fig. 3). Pour plus de détails, on pourra se reporter aux références [14, 15].

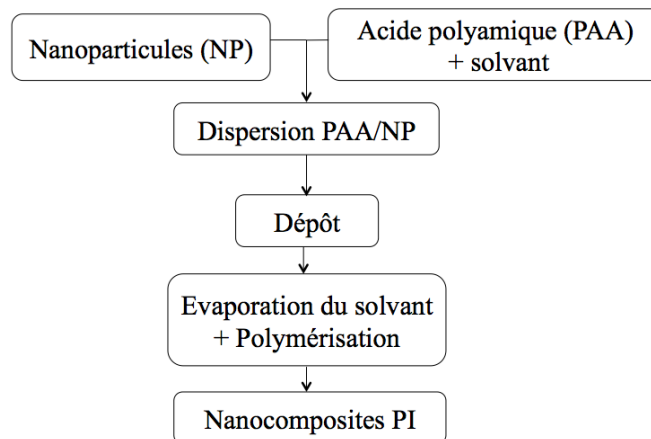


Fig. 3. Schéma général des différentes étapes du procédé d'élaboration des films de PI nanocomposites.

Un travail important d'optimisation des étapes de traitement (thermique et chimique) des nanoparticules et de leur dispersion dans la solution d'acide polyamique (PAA), précurseur du PI, a été réalisé. Ce travail aura permis un contrôle et une minimisation de la taille des agrégats généralement responsables de la dégradation des propriétés diélectriques. Des structures capacitives de type métal-isolant-métal (MIM) ont été réalisées pour les tests électriques. Les films PI nanocomposites ont été déposés sur des substrats en acier inoxydable puis des électrodes d'or déposées par évaporation sous vide viennent finaliser les structures MIM.

3. RESULTATSET DISCUSSION

3.1. Propriétés diélectriques

La Figure 4 présente la dépendance en température à isofréquence de la permittivité ϵ' et des pertes diélectriques ϵ'' ainsi que la dépendance en fréquence de la conductivité AC σ_{AC} à différentes températures pour les films de PI, PI/*h*-BN (120 nm), PI/*t*-BN (95 nm) et PI/*w*-BN (35 nm).

Sur les Figures 4(a) et 4(b), à partir de 200 °C une augmentation importante de la permittivité et des pertes diélectriques dans les films PI apparaît ($\epsilon' \gg 3$ et $\epsilon'' \gg 10^{-1}$). Ces phénomènes de relaxation à haute température ont été précédemment modélisés par notre équipe de recherche et sont associés à une relaxation de type 'polarisation aux électrodes' à basse fréquence. La polarisation aux électrodes apparaît suite à des mouvements macroscopiques de porteurs de charge (électrons, trous ou ions) en volume vers les interfaces avec les électrodes. Sous champ électrique AC et à basse fréquence et/ou haute température, les porteurs de charge s'accumulent de temps en temps pour former une charge d'espace à l'interface avec les électrodes. Dans les films de PI, l'état de l'art attribue ces charges à des ions H⁺ issus de résidus de la réaction de polymérisation. Sur la Figure 4(c), le plateau horizontal à basse fréquence de la conductivité AC correspond à la conductivité DC (σ_{DC}).

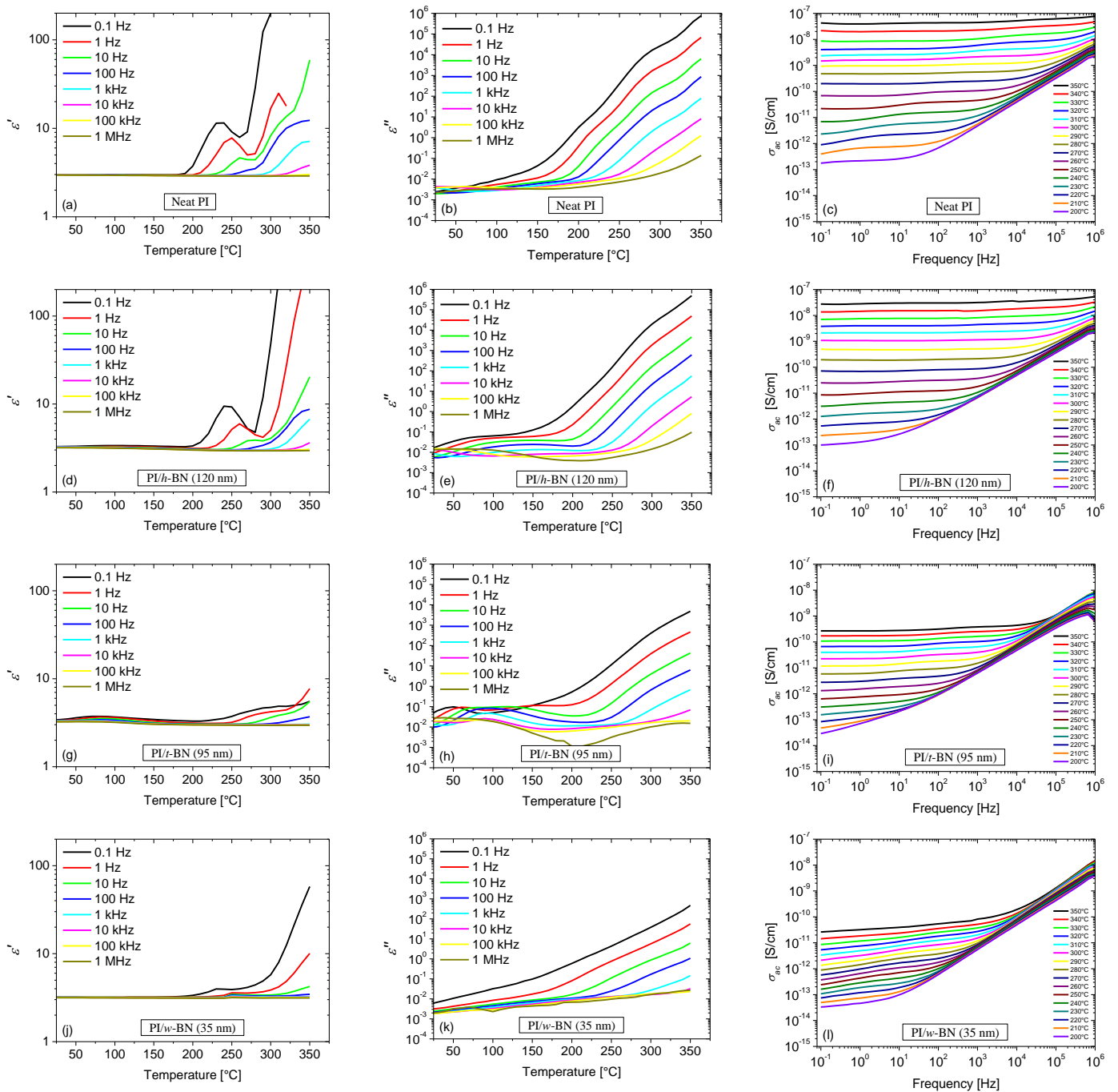


Fig. 4. Permittivité, pertes diélectriques et conductivité AC des films de PI non chargés et de films nanocomposites de PI/h-BN (120nm) , PI/t-BN (95nm) et PI/w-BN (35nm) chargés à 1 %vol. et pour des nanoparticules de BN non fonctionnalisées.

Les Figures 4(d) à 4(f) présentent l'influence des nanoparticules de *h*-BN (120nm) sur les propriétés diélectriques des films PI. Dans ce cas, on peut observer des effets négligeables de ce type de nanoparticules ayant des tailles importantes sur les propriétés diélectriques des films PI. Les Figures 4(g) à 4(i) montrent les propriétés diélectriques des films PI/*t*-BN (95nm). Dans ce cas, en diminuant la taille des nanoparticules, la relaxation de polarisation aux électrodes présente une forte diminution (permittivité et pertes). Par exemple, à 300 °C, la permittivité des films de PI/*t*-BN (95 nm) à 0.1 Hz est limitée à ~5, comparée à celles du PI et PI/*h*-BN (120 nm) respectivement à ~200 et ~48. Au même moment, les pertes diélectriques et la conductivité AC sont aussi significativement réduites.

Les Figures 4(j) à 4(l) présentent l'influence des nanoparticules de *w*-BN (35 nm) sur les propriétés diélectriques des films PI. Avec la diminution de la taille des nanoparticules en dessous de 100 nm, on remarque une importante réduction de la conductivité DC entre 2 et 3 décades traduisant la forte amélioration de la qualité de l'isolation électrique pour les films PI/*w*-BN. Le changement d'énergie d'activation dans le cas de deux plus petites tailles de nanoparticules (*t*-BN et *w*-BN) renseigne sur une modification notable des mécanismes de conduction responsables de telles variations. A taux de chargement constant (1 %vol.), la diminution de la taille des nanoparticules permet qu'elles soient présentes en plus grand nombre développant ainsi avec le PI un volume d'interphase plus important piégeant les ions H^+ .

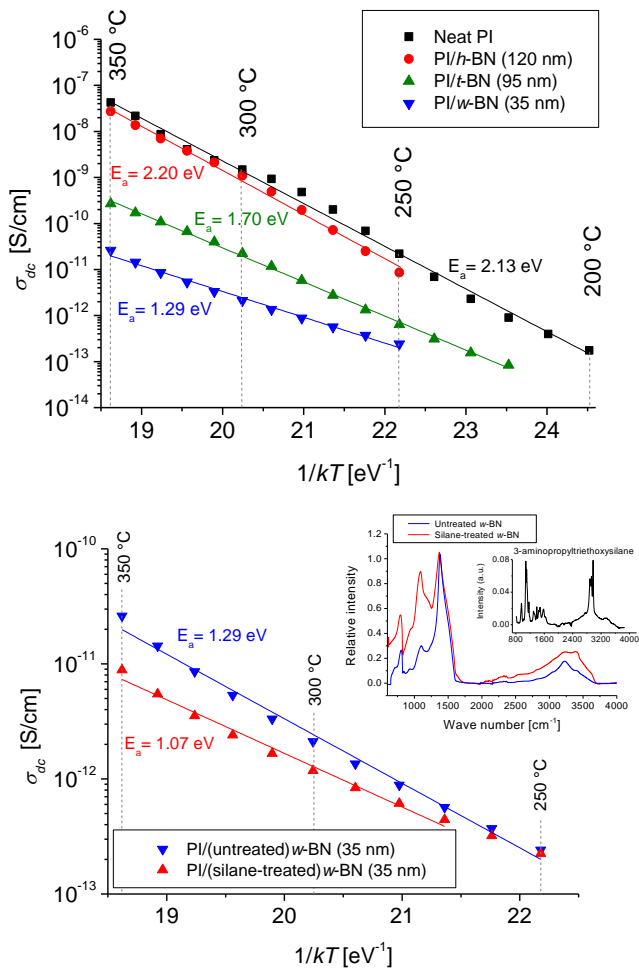


Fig. 5. (a) Conductivité DC en fonction de la température des films PI/BN nanocomposites (1% vol.) pour différentes tailles de nanoparticules. (b) Effet d'un traitement de surface au silane des *w*-BN sur la conductivité DC des films PI/*w*-BN.

La Figure 5(a) présente la dépendance en température de la conductivité DC σ_{DC} obtenue à 0.1 Hz pour les films de PI non chargés et nanocomposites PI/*h*-BN (120 nm), PI/*t*-BN (95 nm) and PI/*w*-BN (35 nm). L'énergie d'activation E_a du phénomène de conduction, extraite à partir du modèle d'Arrhenius, est de 2.13 eV pour les films de PI non chargés. Cette valeur est en bon accord avec celle du phénomène de conduction ionique reportée dans de nombreux matériaux polymères. Dans le cas des films PI/*h*-BN (120 nm), même si les valeurs de σ_{DC} diminuent légèrement, l'énergie d'activation reste proche de celle des films de PI non chargés avec une valeur de 2.20 eV. Cela signifie que le phénomène de conduction ionique a été légèrement impacté par la présence des nanoparticules *h*-BN (120 nm). Au contraire, dans le cas des films PI/*t*-BN (95 nm) et PI/*w*-BN (35 nm), les valeurs de la conductivité DC et de l'énergie d'activation ont fortement diminué. La conductivité DC est réduite d'un facteur 2 à 3 ordres de grandeur en comparaison avec celles des films de PI non chargés. Elle est de seulement de $2 \times 10^{-11} \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$ à 350 °C pour les films de PI/*w*-BN (35 nm) alors dès 200 °C les films de PI non chargés deviennent semi-résistifs (i.e. $\sigma_{DC} \gg 10^{-12} \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$). Il semble que les nanoparticules de *w*-BN (35 nm) soient en mesure d'étendre le comportement isolant des films PI au-delà de 300 °C. De plus, l'importante diminution des énergies d'activation à 1.70 eV pour les films PI/*h*-BN (95 nm) et à 1.29 eV pour les films PI/*w*-BN (35 nm) met en évidence une modification significative des mécanismes de conduction électrique dans

les films de PI nanocomposites où les mouvements ioniques sont impliqués.

La Figure 5(b) montre l'effet d'un traitement de surface des nanoparticules *w*-BN (35 nm) par un agent couplant à base de silane sur la conductivité DC des films PI/*w*-BN en fonction de la température. La figure insérée présente quant à elle les spectres infrarouges des nanoparticules avant et après traitement au silane ainsi que celui de l'agent couplant. Le spectre infrarouge de l'agent couplant présente un pic d'absorbance à 1079cm^{-1} et une large bande entre 2400 et 3600cm^{-1} . Après le traitement de surface au silane des nanoparticules *w*-BN (35 nm), on peut observer que l'intensité des mêmes pics est augmentée comparée à celle des nanoparticules non traitées. L'effet d'une telle fonctionnalisation de surface des nanoparticules *w*-BN se traduit par une diminution supplémentaire de la conductivité DC des films nanocomposites dans la gamme de températures entre 250 °C et 350 °C là où les porteurs de charge ioniques sont très mobiles. Ainsi, l'agent couplant au silane agit comme un lien d'accroche moléculaire efficace entre les chaînes macromoléculaires du PI et les nanoparticules de *w*-BN améliorant le nombre de liaisons et donc le volume de l'interphase. Une énergie d'activation plus faible $E_a = 1.07 \text{eV}$ pour les films nanocomposites de PI/*w*-BN traités au silane est obtenue ce qui met en évidence le rôle important de l'interphase au niveau de l'amélioration des propriétés diélectriques.

3.2. Courants de conduction

La Figure 6 présente les courants de polarisation en fonction du temps des films PI et PI/*w*-BN nanocomposites pour des champs électriques appliqués entre 0.1 et 1.5 MV/cm et pour différentes températures entre 200 °C et 350 °C. Pour les films de PI à 200 °C, les courants de polarisation sont plutôt invariants en fonction du temps sous 0.1 et 0.5 MV/cm. Au contraire, pour des champs plus forts comme 1 et 1.5 MV/cm, les courants de polarisation présentent un pic anormal apparaissant vers 100 s ce qui correspond à un paquet de charge ionique atteignant la contre électrode. Les ions bloqués entraînent la diminution du courant.

Pour les films de PI/*w*-BN à 200 °C, les courants transitoires présentent une décroissance régulière en fonction du temps jusqu'au courant de conduction sans apparition de pic de paquet de charge. Cela veut dire que les contributions ioniques de courant sont largement réduites par la présence des nanoparticules de *w*-BN. La conséquence directe d'un tel blocage efficace des ions est une diminution d'environ 2 ordres de grandeur des courants de conduction pour 0.1 MV/cm and de 3 ordres de grandeur pour 0.5, 1 et 1.5 MV/cm.

Pour les températures plus élevées ($T \geq 250 \text{ °C}$), les films de PI montrent des amplitudes plus grandes des courants avec des pics de paquet de charge ionique plus élevés apparaissant aux temps plus courts en augmentant la température. La conséquence de telles accumulations de charges ioniques au voisinage des électrodes entraîne une seconde augmentation des courants de polarisation à plus longs temps saturant entre 0.1 et 1 mA (cf. Figure 6(b)-6(d)). Ce second courant anormal s'explique par un renforcement de champ électrique aux interfaces PI/électrode dû à une hétérocharge d'espace entraînant une réduction de la hauteur de barrière de potentiel et une injection massive électronique comme effet secondaire du transport d'ions.

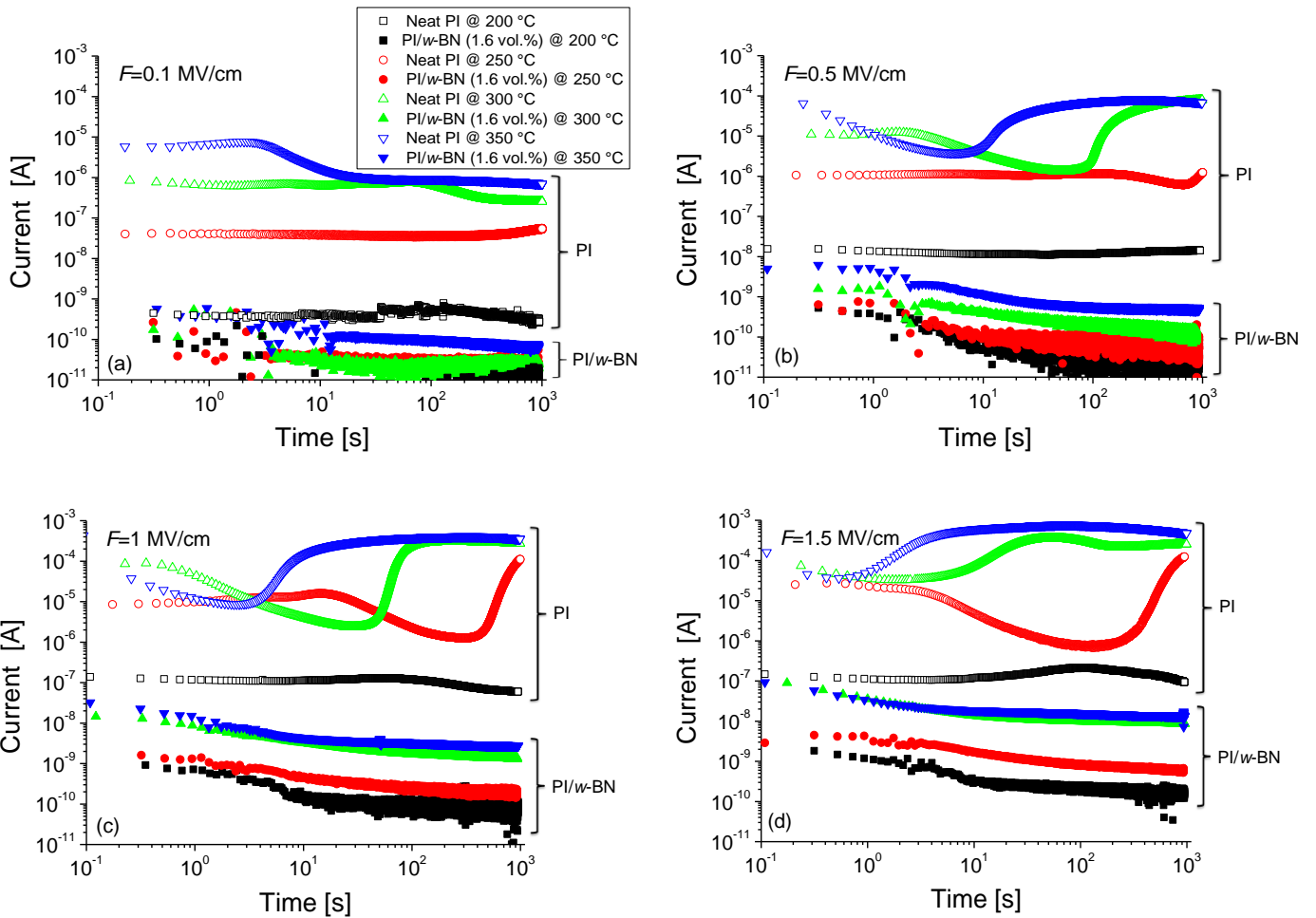


Fig. 6. Courants de polarisation dans les films de PI non chargés et nanocomposites PI/w-BN (1.6 vol.%) en fonction du temps et pour différentes températures et champs électriques appliqués: (a) 0.1 MV/cm, (b) 0.5 MV/cm, (c) 1 MV/cm et (d) 1.5 MV/cm.

Les mêmes mesures pour les films de PI/w-BN entre 250 °C et 350 °C montrent une amélioration très importante des propriétés électriques jamais observée jusqu'à présent. Dans ce cas, et malgré les gammes de températures et de champs élevés, les courants de polarisation présentent une décroissance continue. Par exemple à 350 °C, le courant de fuite après 1000 s reste entre 1 et 30 nA pour des champs entre 0.5 et 1.5 MV/cm (cf. Figure 4(b)-4(d)). Cela correspond à une importante diminution des courants de fuite d'environ un facteur 10^5 pour des températures entre 250 °C et 350 °C. Par ailleurs, il est à noter que le courant de fuite est plus faible à 350 °C dans les films PI/w-BN qu'à 200 °C dans les films PI ouvrant la voie aux applications en Génie Electrique pour de tels matériaux PI nanostructurés.

Dans le but d'identifier les changements d'un régime ohmique où la conduction des charges électrique est contrôlée par sauts (*hopping*) vers un régime non-linéaire de la densité de courant fonction du champ ($j-F$) avec des pentes $p \geq 2$ (phénomènes d'injection et/ou de courants limités par charge d'espace), les courants de conduction fonction du champ entre 200 °C et 350 °C ont été tracés (cf. Figure 7).

Pour les films de PI (cf. Figure 7(a)), il a été choisi d'extraire les courants de conduction juste avant l'apparition du pic de paquet de charges caractérisant le transport d'ion et non l'injection secondaire. Quelle que soit la température, on peut observer dès 0.1 MV/cm jusqu'à 0.5-0.6 MV/cm, les courbes $j-F$ présentent des pentes $p \approx 2$ indiquant une injection et/ou des phénomènes de courants limités par charge d'espace prononcés. Ce résultat est en bon accord avec d'autres

publications reportées sur les films PI qui ont montré une conduction limitée par charge d'espace au-dessus de 200 °C [1, 2]. Au-dessus de 0.5-0.6 MV/cm et à partir de 200 °C, les films PI montrent clairement une conduction limitée par charge d'espace avec des pentes $p > 2$ sur les courbes $j-F$.

Pour les films PI/w-BN nanocomposites, la région ohmique ($p \approx 1$) sur les courbes $j-F$ est clairement obtenue de nouveau dans une large gamme de champ jusqu'à ~ 1 MV/cm et pour toutes les températures. Le fait qu'un piègeage efficace dans les films PI/w-BN nanocomposites a drastiquement supprimé le transport de paquets de charge ionique dans le volume a pour conséquence principale le retour à une conduction ohmique normale. L'nanostructuration permet aux films PI/w-BN de contrôler sa propre conduction électrique de volume. Au-dessus de 1 MV/cm, la conduction limitée par charge d'espace avec des pentes $p > 2$ est observée également mais avec des amplitudes de courant de conduction plus faibles.

Par conséquent, l'nanostructuration des films PI avec des nanoparticules de w-BN permet d'étendre significativement leur gamme de fonctionnement à la fois en champ électrique et en température pour des applications d'isolation électrique sévères en limitant la formation de charge d'espace et les renforcements de champ aux interfaces.

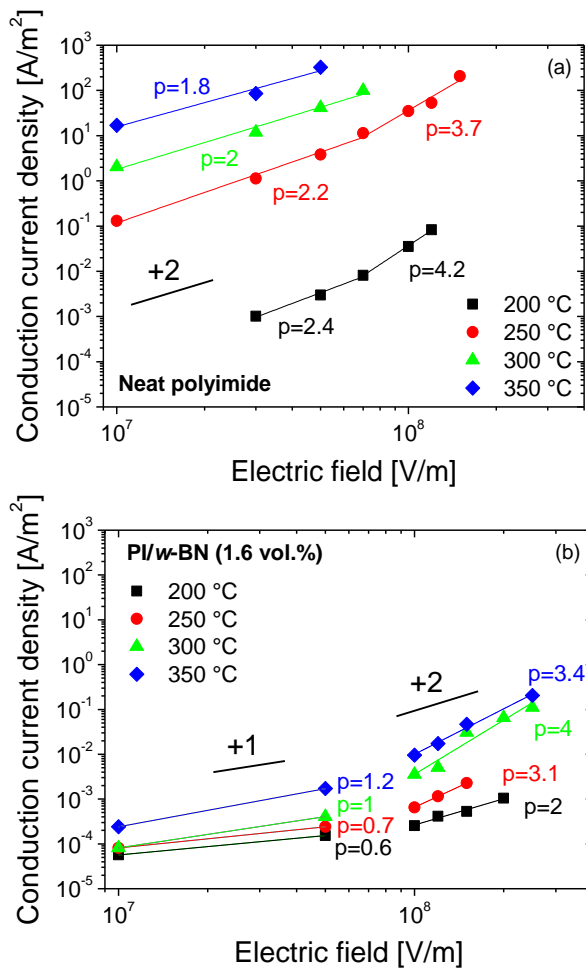


Fig. 7. Densité de courant de conduction en fonction du champ électrique dans le PI non chargé (a) et PI/w-BN (1.6 vol.%) (b) pour différentes températures entre 200 et 350 °C. Les valeurs de p correspondent aux pentes pour chaque région de champs.

3.3. Rupture diélectrique

La Figure 8 présente la dépendance en température de la rigidité diélectrique (définie comme le paramètre d'échelle de la probabilité de Weibull sur 20 points de mesure) des films de PI non chargés et des films nanocomposites de PI/w-BN pour différents taux de chargement. Le champ de rupture des films PI diminue rapidement de 4.2 à 1.8 MV/cm quand la température augmente de 150 °C à 350 °C. Pour les films PI/w-BN nanocomposites avec des taux de chargement jusqu'à 42 % vol., le champ de rupture est pratiquement indépendant de la température avec des valeurs entre 4 et 4.5 MV/cm dans toute la gamme jusqu'à 350 °C. Cette importante amélioration et stabilisation de la rigidité diélectrique valide l'extension de la gamme de fonctionnement en température de ces nouveaux matériaux d'isolation pour les applications électriques.

La Figure 9 présente l'impact du type de nanoparticules nitrurées et l'effet d'un recuit des nanoparticules sur la rigidité diélectrique des films nanostructurés en température. On remarque qu'à taille similaire les nanoparticules de w-BN et Si₃N₄ permettent d'atteindre le même niveau de performance en termes de tenue en champ. En revanche, on remarque clairement la forte influence d'un traitement thermique des nanoparticules avant le procédé d'élaboration des films sur le champ de rupture. En effet, ces particules nitrurées sont connues pour être fortement hydrophiles. Les traitements

thermiques optimisés ont permis de résoudre ce type de problème.

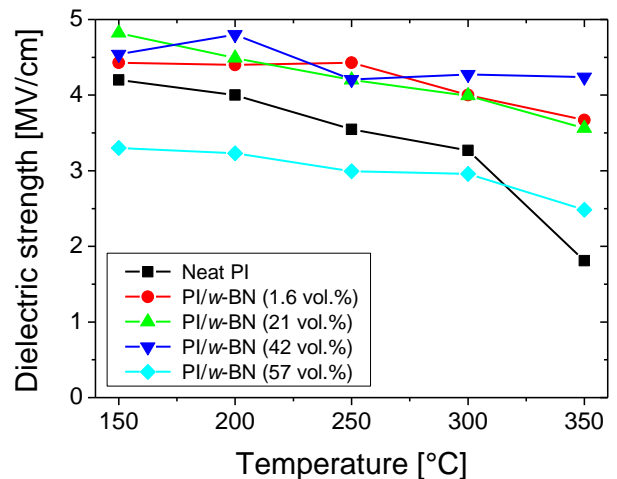


Fig. 8. Rigidité diélectrique DC en fonction de la température des films PI/BN nanocomposites (35 nm) pour différents taux de chargement.

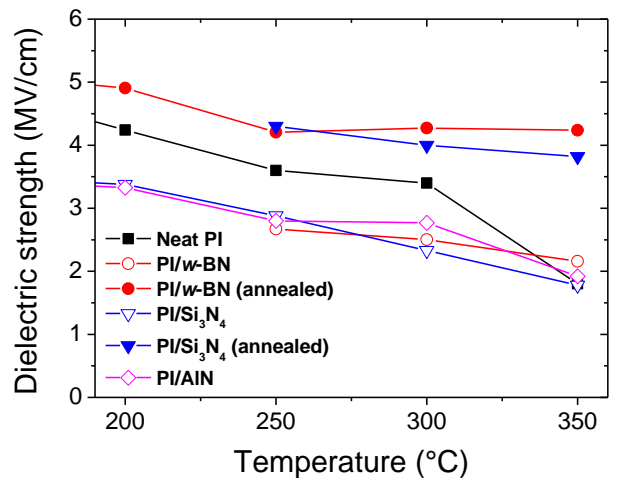


Fig. 9. Rigidité diélectrique DC en fonction de la température des films PI nanocomposites chargés en w-BN, AlN et Si₃N₄ (1 % vol.).

4. CONCLUSION

Depuis 2009, nous développons au LAPLACE des travaux de recherche sur les matériaux isolants polymères nanostructurés en vue du développement d'isolants à propriétés électriques fortement renforcées. Cet article fait une synthèse des travaux amorcés en présentant l'impact d'une nanostructuration avec des nanoparticules nitrurées sur un polymère thermostable largement utilisé en électronique : les films de polyimide. Il est démontré que les nanoparticules utilisées et les procédés d'élaboration optimisés permettent une amélioration importante des propriétés diélectriques des films PI sous faible et fort champ et dans une gamme de températures larges jusqu'à 350 °C. De telles améliorations sont reliées à un contrôle efficace de la conduction ionique permettant de retarder la formation de charge d'espace et de réduire les renforcements de champ internes responsables de phénomènes d'injection.

5. REFERENCES

- [1] G. M. Sessler, B. Hahn and D. Y. Yoon, Electrical conduction in polyimide films, *J. Appl. Phys.* 60, 318 (1986).
- [2] G. Govinda Raju, R. Shaikh and S. Ul Haq, Electrical conduction processes in polyimide films-I, *IEEE Trans. Dielect. Elec. Insul.* 15, 663 (2008).
- [3] S. Diahm and M.-L. Locatelli, Space-charge-limited currents in polyimide films, *Appl. Phys. Lett.* 101, 242905 (2012).
- [4] C.-D. Pham, M.-L. Locatelli, L. Berquez, S. Diahm and G. Teysse, Space charge distributions in polyimide thin films determined by FLIMM, *IEEE Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena*, 16-19 October, Cancun, Mexico, pp. 121-124, 2011.
- [5] Y. Cao and P. C. Irwin, The Electrical Conduction in Polyimide Nanocomposites, *Annu. Report IEEE-CEIDP 2003*, No. 2B-13, pp.116-119, 2003.
- [6] Y. Cao, P. C. Irwin, K. Younsi, The future of nanodielectrics in the electrical power industry, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 11, pp. 797-807, 2004.
- [7] Li H, Liu G, Liu B, Chen W and Chen S 2007 *Mater. Lett.* 61 1507
- [8] Liu W D, Zhu B K, Zhang J and Xu Y Y 2007 *Polym. Adv. Technol.* 18 522
- [9] Alias A, Ahmad Z and Ismail A B 2011 *Mater. Sci. Eng.* 176 799
- [10] S. Diahm, F. SAYSOUK, M.-L. Locatelli and T. Lebey, Electrically insulating composite material, method for producing such a material and use thereof as electrical insulant, *International Patent*, WO 2015/004115 A1, UPS/CNRS, 15 January 2015.
- [11] S. Diahm, F. SAYSOUK, M.-L. Locatelli, B. Belkerk, Y. Scudeller, R. Chiriac, F. Toche and V. Salles, Thermal conductivity of polyimide/boron nitride nanocomposite films, *J. Appl. Polym. Sci.* 132, 42461 (2015).
- [12] S. Diahm, F. SAYSOUK, M.-L. Locatelli and T. Lebey, Huge nanodielectric effects in polyimide/boron nitride nanocomposites revealed by the nanofiller size, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 48, 385301 (2015).
- [13] V. Salles, S. Bernard, J. Li, A. Brioude, S. Chehaidi, S. Foucaud and P. Miele, Design of Highly Dense Boron Nitride by the Combination of Spray-Pyrolysis of Borazine and Additive-Free Sintering of Derived Ultrafine Powders, *Chem. Mater.* Vol. 21, pp. 2920-2929, 2009.
- [14] S. Diahm, F. SAYSOUK, M.-L. Locatelli and T. Lebey, Huge nanodielectric effects in polyimide/boron nitride nanocomposites revealed by the nanofiller size, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 48, 385301 (2015).
- [15] S. Diahm, F. SAYSOUK, M.-L. Locatelli, B. Belkerk, Y. Scudeller, R. Chiriac, F. Toche, V. Salles, Thermal conductivity of polyimide/boron nitride nanocomposite films, *J. Appl. Polym. Sci.*, 132, 42461 (2015).