

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR
ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE MOULOUD MAMMERI DE TIZI-OUZOU

*FACULTE DE GENIE ELECTRIQUE ET D'INFORMATIQUE
DEPARTEMENT D'ELECTROTECHNIQUE*



MEMOIRE

de fin d'études

En vue de l'obtention du diplôme d'ingénieur d'état en Electrotechnique
Option : Réseaux électriques

Thème

**Etude de la tenue diélectrique du
polyamide imide soumis à un
vieillissement hydrothermique**

Proposé et dirigé par :
Mr M. NEDJAR

Etudié par :
Mr D. ACHILI

Promotion 2012

Remerciement

Je tiens à exprimer mes meilleurs sentiments de gratitude à Monsieur Mohammed Nedjar, professeur à l'Université Mouloud Mammeri de Tizi-ouzou, d'abord d'avoir accepté de m'encadrer malgré ses lourdes tâches mais aussi pour le soutien constant et ses précieux conseils qu'il m'a apporté tout au long de ce travail.

J'exprime mes profonds remerciements à tout le personnel de Laboratoire de Physiques d'Electro-Industries d'Azazga en l'occurrence Madame Tabet, chef de service au sein de cette entreprise, pour sa disponibilité à aider les étudiants et Monsieur Ferhat Belabbas, un ingénieur très compétant pour ses conseils permanents qu'il n'a cessé de me léguer.

Je remercie vivement tous ceux et toutes celles qui ont participé du près ou de loin pour mener à bien ce mémoire de fin d'étude.

	Page
Introduction	
Chapitre I - Emaux isolants	
1. Macromolécules	03
2. Emaux isolants	03
3. Utilisations	04
3.1. En fils ronds	04
3.2. En fils méplats	04
4. Application	04
4.1. En électrotechnique	04
4.2. En électronique	05
5. Polyester-imide	05
6. Polyamide imide	06
6.1. Famille chimique du polyamide imide	06
6.2. Propriétés du polyamide imide	06
CHAPITRE II- DEGRADATION DES POLYMERES SOUS L'ACTION DE L'HUMIDITE ET DE LA TEMPERATURE	
1. Vieillissement physique des polymères	07
1.1. Aspects généraux	07
1.2. Pénétration de solvant	08
1.2.1. Facteurs d'influence sur l'absorption de solvant	09
a- La structure chimique du motif structural élémentaire	10
b- Morphologie	10
c- Taux de réticulation	10
1.2.2. Conséquences physiques de l'absorption d'un solvant	11
a- Plastification	11
b- Gonflement	11
2. Vieillissement hydrolytique des polymères	12
2.1. Réaction d'hydrolyse	12
2.2. Mécanismes	13
a- Groupe ester	13
b- Groupe amide	13
c- Groupe imide	13
2.3. Caractéristiques	14
2.4. Conséquences et cinétique de l'hydrolyse	15

3. Vieillissement physique par absorption d'eau	15
3.1. Hydrophile d'un polymère	15
3.1.1. Définition	15
3.1.2. Influence de la structure chimique sur la teneur en eau W_m	15
3.1.3. Influence des conditions d'exposition à l'eau	16
3.2. Conséquences physiques de l'absorption d'eau	16
3.2.1. Plastification par l'eau	16
3.2.1.1. Principe de la plastification	16
3.2.1.2. Conséquences de la plastification	17
3.2.2. Gonflement différentiel	17
a- Au niveau microscopique	17
b- Au niveau macroscopique	17
3.2.3. Endommagement d'un polymère par démixtion	18
3.2.4. Perte d'adjuvants	19
3.2.5. Conséquences sur les propriétés diélectriques	19
4. Vieillissement thermique	19
5. Vieillissement hydrothermique	21

CHAPITRE III- LE MODELE STATISTIQUE DE WEIBULL

1. Modèle statistique de Weibull	22
1.1. Bases du modèle	22
1.2. Modèle à deux paramètres	23
1.3. Modèle à trois paramètres	23
1.4. Signification des paramètres	24
1.4.1. Paramètre d'échelle X_0	24
1.4.2. Paramètre de forme α	24
1.4.3. Paramètre de localisation X_s	25
2. Avantages de la loi de Weibull	25
3. Application du modèle de Weibull à l'étude de la tenue diélectrique des isolants solides	25
3.1. Tenue diélectrique à long terme	25
3.2. Tenue diélectrique à court terme	26

CAPITRE IV- TECHNIQUES EXPERIMENTALES

1. Préparation des échantillons	27
2. Dispositif expérimentaux	29
2.1. Vieillissement hydrothermique	29

2.2. Conditionnement des éprouvettes	30
2.3. Essais de claquage	30

CHAPITRE V- RESULTATS ET DISCISSION

1. Traitement statistique des données	32
1.1. Calcul des probabilités de rupture	32
1.2. Lissage des points expérimentaux	32
1.3. Détermination des facteurs d'échelle et de forme	33
2. Résultats et discussion	33
2.1. Diagramme de Weibull à deux paramètres	33
2.2. Variation de la tension nominale de claquage en fonction du temps de vieillissement	44
2.3. Variation du facteur de forme en fonction du temps de vieillissement	44
3. Discussion et essai d'interprétation	45
Conclusion	46
Bibliographie	47

Actuellement les polymères tels que le polyamide imide, le polyester-imide et le polyuréthane sont très utilisés comme isolants dans les machines électriques. Leur choix est dicté par différents facteurs : l'environnement de travail, la tension appliquée, la vitesse de rotation de machines et la température de fonctionnement.

En service, l'isolation est soumise à plusieurs contraintes : mécanique, température, champ électrique, radiations, humidité, ...etc. Sous l'action séparée ou combinée de ces contraintes, le matériau se dégrade en fonction du temps d'application de ces contraintes qui est connu sous le nom de vieillissement. Il est généralement admis que la dégradation des isolations solides est un phénomène irréversible traduisant une perte des propriétés électriques et mécaniques ainsi qu'une réduction de la durée de vie du polymère. Ce processus est généralement accompagné d'un changement de structure et une variation de la masse du matériau. Un changement de couleur et des dimensions de l'isolant peut être observé.

L'évaluation de la durée de vie d'un isolant est indispensable afin de pouvoir l'utiliser dans les dispositifs électriques tels que les condensateurs, machines électriques, câbles de transport d'énergie, ... La connaissance des mécanismes de dégradation permet d'améliorer les performances des propriétés du matériau par exemple en agissant sur la formulation du mélange en général : quantité de résine, type ou qualité des adjuvants. On peut citer les plastifiants, les charges, les stabilisants et les lubrifiants.

L'expérience a montré que les fils émaillés se dégradent, à long terme, sous l'action prolongée de l'humidité ou de la température d'où la nécessité d'avoir recours à des mélanges avec des additifs permettant de limiter ce changement et d'augmenter la fiabilité de machines électriques.

Le but de ce travail est d'étudier l'effet d'un vieillissement hydrothermique sur la tenue diélectrique du polyamide-imide utilisé comme isolant dans les transformateurs, moteurs et alternateurs. Les essais de vieillissement hydrothermique ont été effectués au Laboratoire de Génie Electrique de l'Université de Tizi-Ouzou. Quant aux expériences de rupture diélectrique, elles ont été réalisées au Laboratoire de physique de l'entreprise Electro-Industries sise à Azazga.

Le mémoire est divisé en deux parties: une première partie concernant une recherche bibliographique composée des chapitres 1, 2 et 3 et une deuxième expérimentale comprenant les chapitres 4 et 5.

Le premier chapitre décrit les émaux isolants : formules chimiques, propriétés, procédés de fabrication et utilisation.

Le deuxième chapitre est consacré à une synthèse sur l'action de l'humidité et de la température sur les isolants solides. Sont exposés les vieillissements thermique et hydrolytique des polymères.

Dans le troisième chapitre est exposé le modèle statistique de Weibull et son application à l'étude de la rupture diélectrique des isolants solides. Les avantages de ce modèle par rapport aux autres modèles statistiques sont présentés.

Le chapitre 4 décrit les différentes techniques expérimentales concernant la confection et le conditionnement des échantillons, le générateur de haute tension et le dispositif de vieillissement. Les méthodes de vieillissement et de claquage ont été aussi présentées.

Dans le chapitre 5 sont rassemblés les résultats concernant l'analyse statistique de la tension de claquage où sont présentés les diagrammes de Weibull à deux paramètres. La variation de la tension nominale de claquage du polyamide imide en fonction du temps de vieillissement hydrothermique a été exposée. L'évolution du paramètre de forme, représentant la pente de la meilleure droite de Weibull, en fonction du temps de vieillissement a été présentée. Une interprétation et une discussion des résultats obtenus ont été données.

Enfin nous terminons notre travail par une conclusion générale et des perspectives.

Dans ce chapitre, nous présentons les émaux isolants : procédés de polymérisation, imprégnation, mise en œuvre, formule chimique, propriétés et utilisation.

1. Macromolécules

Les aspects physico-chimiques et moléculaires déterminent très largement le comportement physique des polymères, la composition élémentaire, la disposition des atomes et des liaisons, l'ordre d'enchaînement et les aspects topologiques définissant la structure de base d'une macromolécule. Cette dernière dépend de la matière chimique des unités, du milieu réactionnel... [1].

Le processus de polymérisation d'un polymère peut être décrit comme suit [2] : la polymérisation rompt la double liaison, ce qui active le monomère et lui permet de se lier à d'autres, pour former une longue chaîne ou macromolécule. Il suffit que deux ou trois molécules se lient pour créer un polymère. Mais en faire un solide aux propriétés mécaniques intéressantes, il faut que les chaînes soient plus longues au moins 500 monomères ; leur longueur ou leur masse moléculaire totale sont des paramètres structuraux importants.

On utilise le degré de polymérisation qui est le nombre de monomères par macromolécule. La plupart des propriétés des polymères dépendent du degré de polymérisation moyen.

2. Emaux isolants

Plusieurs émaux isolants (fils émaillés) sont de plus en plus utilisés dans l'émaillage de fils de bobinage de machines électriques tels que les transformateurs, moteurs et alternateurs. Les qualités d'un émail sont déterminées en tenant compte des conditions de son emploi. Les éléments à faire intervenir pour le choix d'un émail sont: les dimensions des conducteurs, les conditions de mise en oeuvre, le mode de bobinage (long ou rapide), le traitement d'imprégnation, les températures maximales d'utilisation et le milieu ambiant [3]. Les qualités adhésives de ces émaux sur différents matériaux ont été mises en évidence [4].

L'imprégnation de fils émaillés au moyen de vernis appropriés est généralement indispensable après bobinage. Le choix du vernis d'imprégnation et son association correcte au vernis d'émaillage doivent faire intervenir ou bien le comportement du vernis d'imprégnation, ou bien l'ensemble des deux vernis superposés. Ainsi, il faut tenir compte des conditions d'application du vernis d'imprégnation, de sa résistance au vieillissement, de ses qualités diélectriques, de sa tenue aux huiles, aux agents chimiques, aussi de son action

prolongée sur le fil émaillé. Le vernis d'imprégnation ne doit pas attaquer l'émail ni être l'objet d'incompatibilités diverses.

L'expérience a montré que les fils émaillés et les vernis ou résines isolantes peuvent avoir une action réciproque au cours du vieillissement thermique. L'interaction entre vernis et émail peut conférer à l'ensemble fil émaillé-verniss d'imprégnation une durée de vie supérieure ou inférieure à celle du fil émaillé essayé isolément [5].

Des travaux sur le fil émaillé au formvar ont montré que le vernis apporte une protection efficace à l'émail contre la dégradation thermique du matériau et qu'il ne se produit pas d'incompatibilité sensible. De plus, au point de vue de tenue diélectrique, les tensions de claquage sont plus élevées dans le cas du fil émaillé avec vernis en raison de la surépaisseur apportée par ce dernier [6].

Les fils émaillés présentent une bonne résistance à l'action de la température et de l'humidité et une bonne résistance chimique aux solvants des vernis d'imprégnation. Les émaux isolants sont caractérisés par leur classe (F, H, C, etc.).

3. Utilisations

Les cas d'utilisation les plus courants des émaux sont [3] :

3.1. En fils ronds

Ils sont utilisés dans le matériel grand public (électroménager, outillage portatif), l'automobile, les moteurs électriques et les transformateurs de petite et moyenne puissance (≤ 100 kW), les ballasts (éclairage) et les petits bobinages pour l'électronique (en particulier, les bobines de déviation pour tubes TV).

3.2. En fils méplats

Les émaux isolants sont utilisés dans les grandes machines électriques tournantes et les gros transformateurs.

4. Application

Les deux domaines essentiels d'application sont [3] :

4.1. En électrotechnique

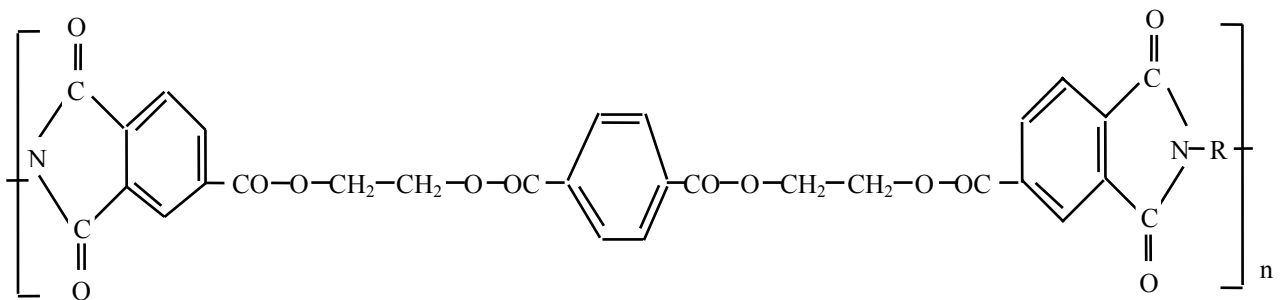
En fréquence industrielle et à courant continu, les principales qualités à exiger sont la stabilité thermique, la résistance mécanique, la résistance aux agents chimiques d'agression (éventuellement aux solvants des vernis d'imprégnation).

4.2. En électronique

On recherche particulièrement des pertes diélectriques réduites, une faible hygroscopicité, des facilités de soudage et de collage. Dans tous les cas, une résistance particulière aux contraintes thermiques peut être imposée.

5. Polyester-imide

Les polyester-imides sont généralement obtenus par la réaction entre les dianhydrides contenant des liaisons ester avec des diamines [7,8]. La formule chimique du polyester-imide est la suivante [7]:



R: groupement alkyle quelconque (primaire, secondaire ou tertiaire).

Les applications des émaux de polyester-imide concernent une grande gamme de fils, de section circulaire ou rectangulaire de toutes dimensions pour les utilisations très étendues aussi bien en électronique qu'en électrotechnique. Les caractéristiques dimensionnelles sont basées sur l'emploi de grades définissant différents surépaisseurs dans l'ordre croissant (grade 1, 2, 3) [9]. Les polyester-imides sont surtout utilisés comme émaux pour fils résistant à la température [7].

Des agents de réticulation sont utilisés et permettent d'obtenir des polyester-imides avec une structure tridimensionnelle semblable à celle des thermodurcissables [10,11].

Des essais de vieillissement thermique ont été réalisés sur des éprouvettes de fils émaillés isolés au polyesterimide de classe H (classe 180°C) [12]. Les échantillons sont des torsades de 125 mm de longueur. Le diamètre du fil est de 0,63 mm et l'épaisseur de l'isolant 35 µm (grade 2). Ces expériences ont conduit à :

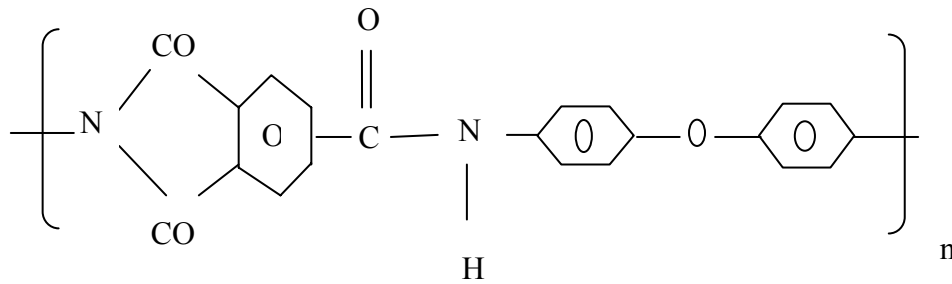
- une tension de claquage de 5,34 kV avant le vieillissement ;
- un indice de température de 182°C ;
- une énergie d'activation de 24,31 kcal/mol.

Des expériences de vieillissement hydrolytique du polyester imide ont montré une bonne résistance du matériau à l'action de l'humidité [13]. La tenue diélectrique du polyester-imide dépend de la vitesse de la rampe et de la forme de la tension appliquée [14].

6. Polyamide imide

6.1. Famille chimique du polyamide imide

La formule chimique du polyamide imide est la suivante [15] :



6.2. Propriétés du polyamide imide

Les propriétés physiques sont :

- densité : 1,380 g/cm³ [15] ;
- conductivité thermique : 0,24 W.m⁻¹.K⁻¹ [16].

Les propriétés mécaniques sont:

- résistance à la traction à 23°C : 117,2 MPa [16] ;
- allongement à la rupture à 23°C : 10-18% [15,16] ;
- module d'Young à 23°C : 5,200 MPa [15,16].

Les propriétés électriques sont [16]:

- résistivité transversale : 3,0.10¹³ Ω.m ;
- résistivité superficielle : > 1,0.10¹⁷ Ω ;
- rigidité diélectrique : 17,3 kV/mm ;
- constante diélectrique à 106 Hz: 4,0 ;
- facteur de dissipation à 106 Hz: 9.10⁻³.

L'effet de la vitesse de la rampe et de la forme de la tension sur la tenue diélectrique du polyamide imide a été mis en évidence [14]. Le vieillissement hydrolytique a un effet sur la tension de claquage du polymère [17].

Le terme vieillissement désigne toute altération lente et irréversible des propriétés d'un polymère. Il peut être dû aux effets de l'environnement ou bien à l'instabilité propre du matériau. Cette dégradation peut concerner la structure chimique des macromolécules ou des adjuvants (vieillessement chimique), la composition du matériau (pénétration ou départ de petites molécules) ou bien son état physique (taux de cristallinité, fraction de volume libre, contraintes internes, etc.).

1. Vieillessement physique des polymères

Selon J. Verdu [18], tout processus conduisant à une altération des propriétés d'utilisation d'un matériau sans qu'il y ait de modification chimique de ce dernier, est appelé vieillissement physique. On dit que le vieillissement est physique si les propriétés chimiques du polymère ne sont pas affectées :

- soit à l'échelle moléculaire ;
- soit à l'échelle macromoléculaire : sans modification de la distribution des masses moléculaires, ni de la densité de réticulation.

Le vieillissement physique peut se produire avec transfert de masse résultant du phénomène de transport (pénétration de solvant, migration d'adjuvants), ou bien sans transfert de masse caractérisé par une modification de la configuration spatiale des macromolécules (relaxation d'enthalpie, de volume, de contraintes, ...), ou bien par les phénomènes de surfaces (fissurations en milieu tensioactif).

Dans ce qui suit, nous présentons le vieillissement physique avec transfert de masse.

1.1. Aspects généraux

Les phénomènes de transfert de masse font essentiellement appel aux notions de solubilité, de diffusion et de plastification. Ils peuvent être schématisés comme indiqué sur la figure II.1 [19] :

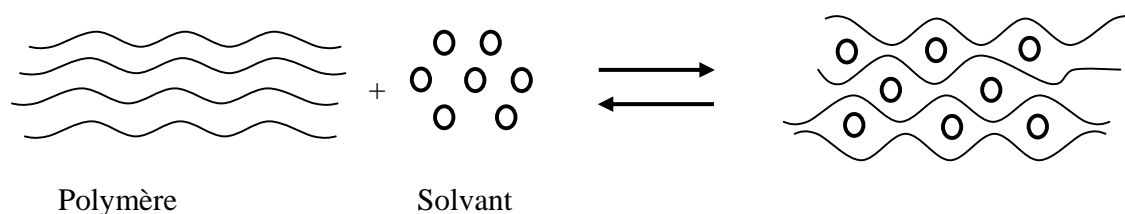


Figure II.1 : Schématisation des phénomènes de transfert de masse.

Le nombre de petites molécules susceptibles de s'installer dans le réseau macromoléculaire dépend du nombre de sites accessibles portés par la macromolécule (figure II.2), capables d'établir des interactions avec elles et donc de les retenir. Ces interactions sont essentiellement déterminées par la polarité électrique du groupe en présence. C'est pourquoi la majorité des polymères peu polaires tel que le Polyéthylène (PE) et le Polytétrafluoroéthylène (PTFE) ont peu ou pas d'affinité avec la majorité des solvants.

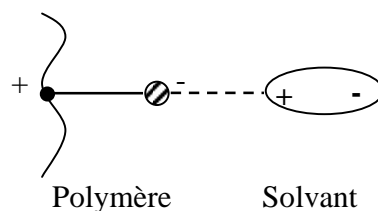


Figure II.2 : Interaction polymère - solvant.

Si les polymères comportent des structures polaires, celles-ci peuvent s'associer entre elles et ce phénomène contribue fortement à la cohésion mécanique du matériau. Dans ce cas, pour que le solvant prenne place dans le réseau macromoléculaire, il faut qu'il rompe les interactions polymère-polymère afin d'établir des interactions plus fortes polymères-solvant. Mais il existe des polymères polaires tel qu'un polyamide qui ne présente pas d'affinité pour la majorité des solvants car les interactions polymère-polymère sont plus fortes que la majorité des liaisons solvant qu'il pourrait établir.

Si la pénétration du solvant dans le polymère entraîne la rupture des liaisons secondaires entre macromolécules, la cohésion mécanique que celles-ci assuraient tend à disparaître, le matériau devient alors déformable, d'où le principe de la plastification [19]. Cette dernière est délibérément recherchée pour transformer un matériau rigide en un matériau souple.

1.2. Pénétration de solvant

La pénétration des solvants au sein d'un matériau est gouvernée par les lois de la diffusion qui peuvent prendre des expressions diverses (Fick, Langmuir,...) et parfois complexes si le diffusant modifie la perméabilité de la matrice au fur et à mesure de sa pénétration (plastification, réactions chimiques). Les principaux types de comportements observables sont résumés sur la figure II.3.

On distingue les cas suivants :

- la courbe 1 représente l'interaction physique pure, elle est réversible après dessiccation du moins du point de vue gravimétrique et en considérant un polymère initialement insoluble dans le milieu considéré ;
- La courbe 2 correspond à la réaction chimique conduisant à une augmentation de la masse sèche, c'est l'exemple de la réaction d'addition ou la réaction d'hydrolyse ;
- La courbe 3 présente la réaction chimique conduisant à une diminution de la masse sèche du polymère, après une certaine durée de vieillissement [20]. On peut attribuer ce cas de figure à des dégradations physiques ou chimiques ou à une hydrolyse du matériau. Des groupements chimiques peuvent être arrachés des chaînes du polymère et être évacués dans le solvant, ce qui explique une perte de matière et la baisse de la masse globale [21].

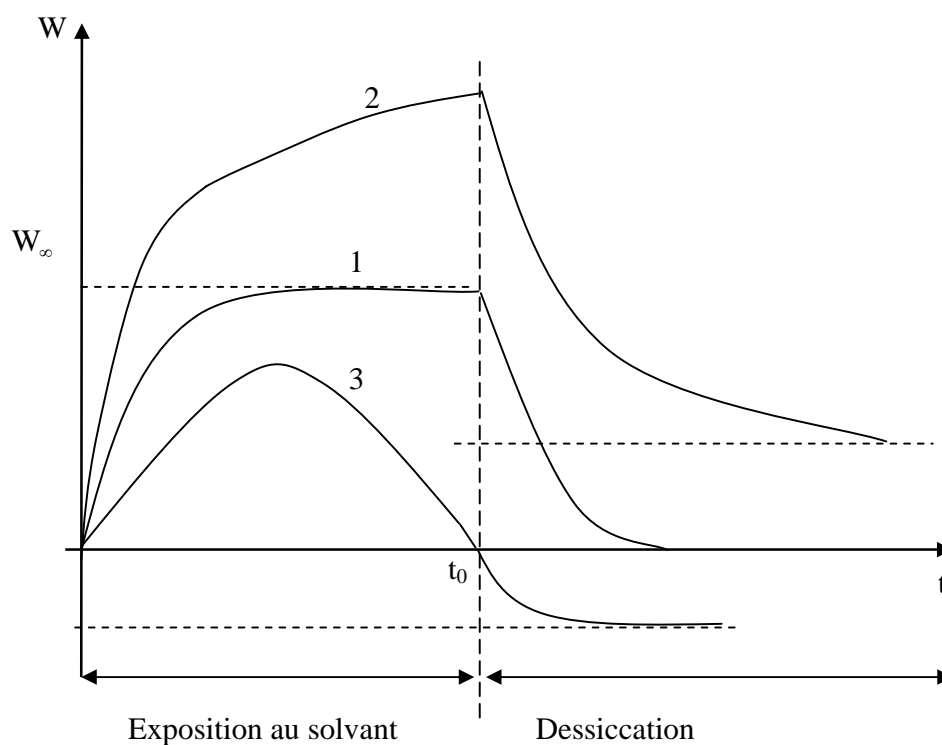


Figure II.3 : Courbe d'absorption ($t < t_0$) et de désorption ($t > t_0$) [18].

1.2.1. Facteurs d'influence sur l'absorption de solvant

La pénétration d'un solvant dans un polymère est influencée par les facteurs suivants :

a- La structure chimique du motif structural élémentaire

C'est elle qui détermine l'affinité du polymère pour le solvant considéré. En effet, le solvant peut dissoudre totalement le polymère s'il est linéaire. Selon les lois de la thermodynamique, le coefficient X_{12} appelé coefficient d'interaction polymère-solvant, permet de prévoir l'affinité d'un polymère pour un diffusant. Elle est d'autant plus faible que X_{12} est fort. Il est donné par l'équation de Flory-Huggins [19]:

$$X_{12} = \frac{V_1}{R.T} . (\delta_S - \delta_P)^2 + x_S \quad (\text{II.1})$$

avec :

V_1 : volume molaire du solvant qui est le rapport entre la masse molaire et la masse volumique ;

R : constante des gaz parfaits ;

T : température absolue ;

δ_S : paramètre de solubilité du solvant ;

δ_P : paramètre de solubilité du polymère ;

X_S : terme de correction entropique négligeable si les interactions polymère-solvant sont faibles ;

δ_S et δ_P sont les paramètres de solubilité.

Le paramètre de solubilité est la racine carrée d'une densité d'énergie cohésive.

$$\delta = \sqrt{\frac{E_C}{V}} \quad (\text{J}^{1/2} \cdot \text{m}^{-3/2}) \quad \text{ou bien souvent en MPa}^{1/2} \quad (\text{II.2})$$

avec :

V : volume ;

E_c : énergie cohésive.

b- Morphologie

Les zones cristallines peuvent être considérées comme imperméables, donc la solubilité globale dépend du taux de cristallinité. Dans le cas des polymères amorphes, l'état de gélification lors de la mise en œuvre qui détermine la compacité du réseau macromolécule, joue un rôle important.

c- Taux de réticulation

Le taux de réticulation joue également un rôle important dans la diffusion des solvants dans les polymères. En effet, la pénétration est d'autant plus aisée que le taux de réticulation est

faible.

1.2.2. Conséquences physiques de l'absorption d'un solvant

a- Plastification

D'après J. Verdu [18], toute modification de la structure ou de la composition d'un polymère est due à la plastification de celui-ci. La plastification d'un polymère se traduit par la diminution concomitante de la température de transition vitreuse et du seuil de plasticité ou d'endommagement. L'exemple typique est celui des polyamides en atmosphère humide. C'est le cas du PA 6-6 sec, où sa contrainte en traction dépasse 80 MPa et l'allongement à la rupture est d'environ 50 % à 25 °C. Pour le polymère saturé en eau (8,5 % en poids), la contrainte au seuil est inférieure à 40 MPa et l'allongement à la rupture dépasse 300 % [19].

La température de transition vitreuse T_v peut être calculée en fonction de la concentration en solvant à l'aide de la théorie du volume libre [22] :

$$T_v = \frac{\alpha_p \cdot v_p \cdot T_{g_p} + \alpha_d (1 - v_p) T_{g_d}}{\alpha_p v_p + \alpha_d (1 - v_p)} \quad (\text{II.3})$$

avec :

$T_{g_p} = T_g$ du polymère sec ;

α_p : coefficient de dilatation du polymère ;

α_d : Coefficient de dilatation du solvant ;

v_p : fraction volumique du polymère dans l'échantillon gonflé;

T_{g_d} : température de transition vitreuse du solvant.

La variation de la température de transition vitreuse peut atteindre 30 °C dans le cas d'un époxy contenant 2 à 3 % d'eau [22].

b- Gonflement

La pénétration d'un solvant dans un polymère peut être schématisée comme indiqué sur la figure II.4 [23]. Le processus peut atteindre l'équilibre au stade 1 correspondant à une faible teneur en eau ou au stade 2 où la pénétration du solvant est très forte. Le phénomène peut aller jusqu'à la dissolution du polymère dans le solvant, comme présenté à la figure II.4 (stade 3).

Dans la pratique, un gonflement, même limité, peut provoquer des problèmes d'instabilité dimensionnelle et éventuellement développer des contraintes internes.

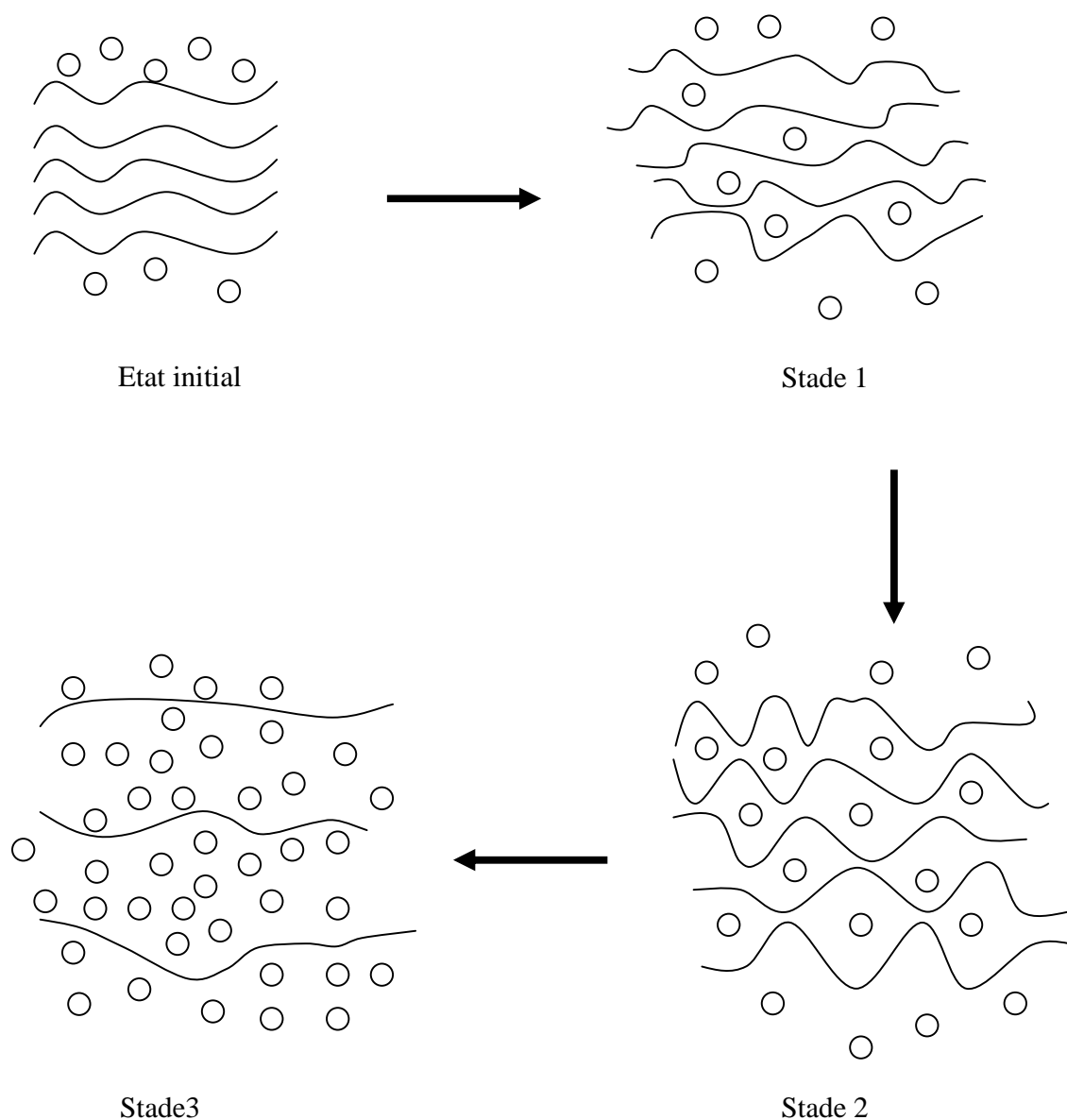


Figure II.4 : Schématisation de la diffusion d'un solvant dans le polymère.

○ : Molécule de solvant

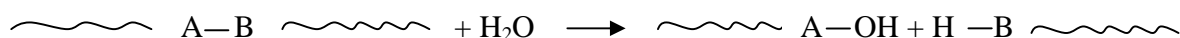
~~~~~ : chaîne macromoléculaire.

## 2. Vieillessement hydrolytique des polymères

### 2.1. Réaction d'hydrolyse

Les polymères absorbent une quantité plus ou moins importante d'eau en fonction de leur structure et en particulier de la polarité de leur motif monomère. Dans certains cas, le polymère ne se contente pas de fixer les molécules d'eau, il réagit plus ou moins rapidement avec elles. Le

cas le plus fréquent et le plus important sur le plan pratique peut être décrit comme suit [24] :

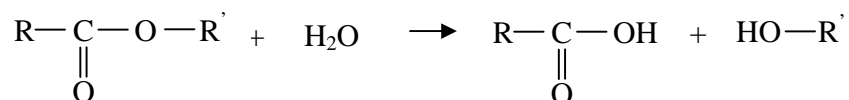


Cette réaction conduit à la coupure de chaînes entre nœuds de réticulation et ainsi création de fragments de chaînes macromoléculaires se retrouvant libres dans le réseau et pouvant diffuser vers le milieu extérieur. On parle dans ce cas de lessivage. Il se crée un volume libre qui peut accueillir des molécules d'eau supplémentaires [21].

## 2.2. Mécanismes

Il existe trois mécanismes qui font intervenir les groupes suivants [19] :

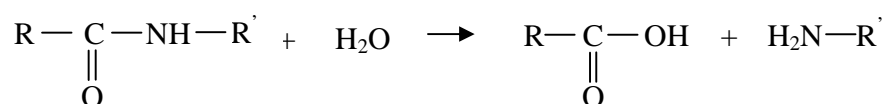
### a- Groupe ester



Ce groupe peut se trouver dans :

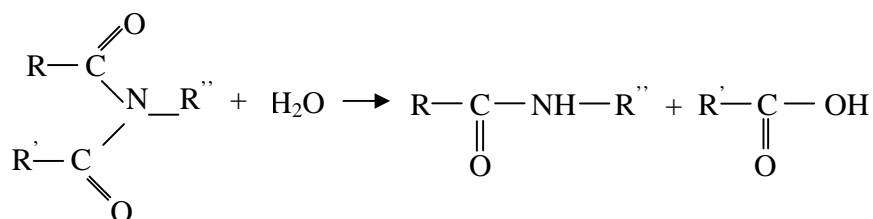
- les polyesters linéaires ;
- les polyesters tridimensionnels ;
- les polyuréthanes-polyesters ;
- les poly époxy réticulés par des anhydrides.

### b- Groupe amide



On le trouve dans les polyamides et les poly (amides-imides)

### c- Groupe imide



On le trouve dans les polyimides et les poly (amides-imides).

### 2.3. Caractéristiques

Les phénomènes d'hydrolyse ont un certain nombre de caractéristiques communes [25] :

- a- ils sont généralement très lents à température ambiante, la vitesse de l'acte chimique élémentaire étant elle-même faible et le processus étant souvent contrôlé par la diffusion de l'eau dans le matériau. Dans ce cas, les effets de l'hydrolyse se manifestent à long terme (plusieurs mois ou plusieurs années).
- b- Les effets de l'hydrolyse se superposent aux effets physiques de l'absorption d'eau. Ces derniers effets seuls sont réversibles. En effet, dans le cas où le matériau n'est pas endommagé, on observe une stabilisation lorsque celui-ci est parvenu à saturation. Comme l'indique la figure II.5, lorsque  $t < t_1$ , (période initiale) les phénomènes physiques prédominent et lorsque  $t > t_1$ , le processus se stabilise. D'après la courbe 2 de la figure II.5, contrairement aux effets physiques, les effets de l'hydrolyse d'un polymère sont irréversibles et ils entraînent la disparition du palier de la stabilisation ( $t > t_1$ ).
- c- L'hydrolyse est une réaction activée par une élévation de la température, elle devient très rapide aux températures de mise en œuvre du polymère, d'où la nécessité d'une dessiccation des poudres et granulés avant la mise en œuvre.
- d- L'hydrolyse est une réaction susceptible d'être catalysée par des agents chimiques divers, tels que les ions  $H^+$ ,  $OH^-$ , métaux de transition, ... d'où l'importance du milieu réactionnel sur le vieillissement.

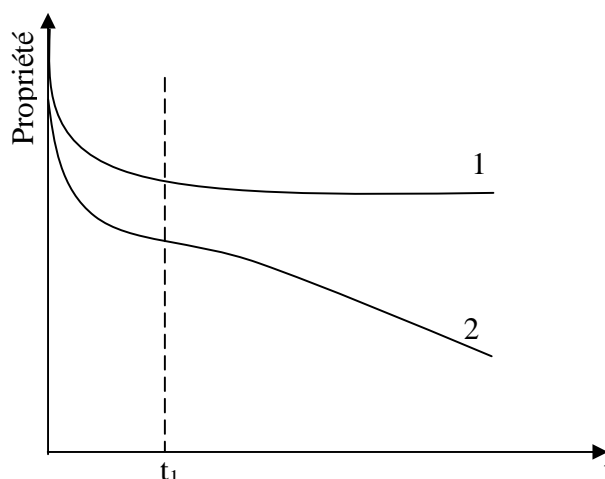


Figure II.5 : Evolution d'une propriété d'un polymère hydrophile en fonction du temps d'exposition au milieu humide [25].

## 2.4. Conséquences et cinétique de l'hydrolyse

L'hydrolyse d'un polymère se traduit par des coupures de chaînes, d'où une diminution de la masse moléculaire ou de la densité de réticulation qui peut être utilisée pour caractériser l'avancement de la réaction d'hydrolyse. La coupure de chaînes crée de nouvelles macromolécules, on peut ainsi écrire dans le cas d'un polymère linéaire [25]:

$$\frac{1}{M_t} - \frac{1}{M_0} = n_t \quad (\text{II.4})$$

avec :

$\overline{M}_t$  : masse molaire moyenne au temps t d'exposition ;

$\overline{M}_0$  : masse molaire moyenne initiale ;

$n_t$  : nombre de moles de coupure de chaînes au temps t dans 1gramme d'échantillon.

La cinétique de dégradation se présentera alors sous la forme  $n_t = f(t)$ , ce qui permettra la détermination de manière conventionnelle la vitesse et les énergies d'activation afin de faire une prédiction de la durée de vie.

## 3. Vieillessement physique par absorption d'eau

### 3.1. Hydrophile d'un polymère

#### 3.1.1. Définition

L'hydrophile d'un polymère peut être apprécié d'après la quantité d'eau  $W_m$  (exprimée généralement en %) qu'il est capable d'absorber à l'équilibre, dans un milieu isotherme à taux hygrométrique constant proche de 100% HR. Le temps au bout duquel cet équilibre est atteint est donné par la relation suivante [25]:

$$t = \frac{L^2}{D} \quad (\text{II.5})$$

avec :

L : épaisseur de l'échantillon ;

D : coefficient de diffusion de l'eau dans le polymère, compris entre  $10^{-11}$  et  $10^{-14}$ .

#### 3.1.2. Influence de la structure chimique sur la teneur en eau $W_m$

Comme nous l'avons dit précédemment l'un des facteurs qui peuvent influencer la diffusion d'un solvant dans un polymère, est la structure chimique de celui-ci. Le problème peut être abordé par l'étude des paramètres de solubilité. Sachant que l'eau se distingue des autres

solvants usuels par son paramètre de solubilité très élevé  $\delta_p = 40 \text{ MPa}^{1/2}$ , alors que peu de polymères dépasse  $30 \text{ MPa}^{1/2}$ . Van Krevelen tire la règle grossière suivante [26] : « un polymère est d'autant plus hydrophile que son paramètre de solubilité est plus élevé ».

### 3.1.3. Influence des conditions d'exposition à l'eau

En milieu atmosphérique, la concentration d'eau à l'équilibre dans un polymère  $W_m$  est une fonction croissante de l'hygrométrie relative HR. Généralement, on écrit [27]:

$$W_m = K.(HR)^\alpha \quad (\text{II.6})$$

avec :

K: constante dépendante de la nature du polymère et de la température ;

$\alpha$  : exposant généralement voisin de l'unité sauf complications liées à une démixtion.

Dans un milieu liquide, la teneur en eau  $W_m$  est liée au potentiel chimique de l'eau. Elle tend à diminuer lorsque la concentration en soluté augmente. L'une des conséquences pratiques est que l'eau pure est généralement plus agressive par rapport à l'eau de mer.

## 3.2. Conséquences physiques de l'absorption d'eau

### 3.2.1. Plastification par l'eau

#### 3.2.1.1. Principe de la plastification

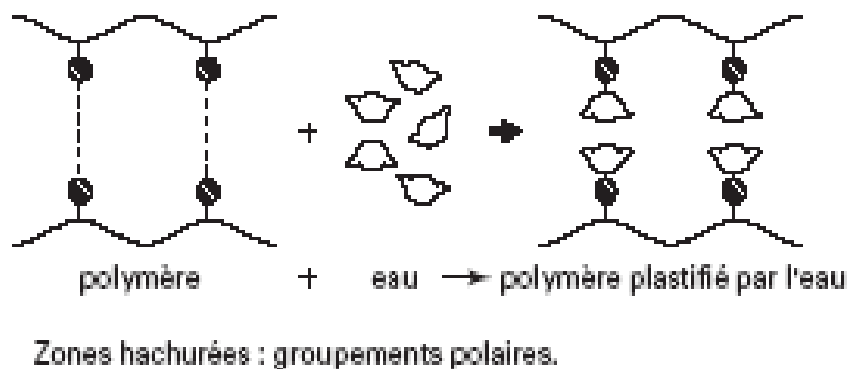


Figure II.6 : Effet de la plastification d'une macromolécule.

Les effets de la plastification sont très visibles dans le cas des polymères les plus hydrophiles, tels que les polyamides et les polyépoxydes. Lorsque les molécules d'eau pénètrent dans le réseau macromoléculaire, elles brisent les liaisons secondaires entre groupes polaires

portés par des chaînes voisines pour établir des liaisons préférentielles entre eux. Le processus de la plastification est schématisé à la figure II.6.

En l'absence de réaction d'hydrolyse, les effets de la plastification sont réversibles, autrement dit, les propriétés initiales sont restaurées après dessiccation.

### **3.2.1.2. Conséquences de la plastification**

La présence d'eau dans un réseau macromoléculaire peut entraîner le matériau aux conséquences suivantes :

- la plastification d'un matériau par l'eau détruit partiellement la cohésion mécanique du réseau macromoléculaire, assurée initialement par les liaisons secondaires, augmentant ainsi la mobilité moléculaire ;
- Diminution de la température de transition vitreuse  $T_g$ . En effet, selon des études effectuées sur des époxydes réticulés par des amines, la chute de  $T_g$  peut atteindre 30 à 40°C pour une absorption d'eau de 2 à 3%, elle peut aller jusqu'à 80°C pour les systèmes absorbant plus de 6%. Le phénomène peut être théoriquement prédit [28, 29] ;
- Un gonflement qui peut être également prédit théoriquement [29].

La plastification d'un matériau par absorption d'eau est théoriquement réversible, cependant, cette réversibilité peut être altérée par divers phénomènes :

- rupture par gonflement différentiel ;
- hydrolyse ;
- relaxation de contraintes résiduelles, facilitée par l'état de plastification ;
- réarrangements morphologiques divers, par exemple post-cristallisation.

### **3.2.2. Gonflement différentiel**

#### **a- Au niveau microscopique**

Si le matériau est hétérogène (cas des polyamides par exemple), seule la phase amorphe qui subit un gonflement par l'eau, par contre la phase cristalline demeurant stable. Par conséquent, des contraintes peuvent se développer à l'interface, qui peuvent éventuellement conduire à une rupture mécano-chimique de la chaîne [30].

#### **b- Au niveau macroscopique**

On distingue deux types de mécanismes de vieillissement impliquant des gonflements différentiels:

- **Matériaux composites** : dans ce cas, seule la matrice absorbe les solvants, ce qui se traduit par un gonflement différentiel charge-matrice, d'où la fatigue mécanique de l'interface. La rupture des liaisons à ce niveau entraîne une chute des propriétés mécaniques. Le vide ainsi créé entre la charge et la matrice devient un site d'accueil et de cheminement du solvant, ce qui accélère le processus de défaillance. C'est l'une des raisons pour lesquelles le choix et l'application d'agents de couplage sont souvent déterminants en ce qui concerne les propriétés à long terme.
- **Gonflement différentiel surface - cœur** : quand un solvant diffuse dans un polymère, il induit un gonflement. En régime transitoire, les zones superficielles et les zones internes du matériau contiennent des quantités différentes de solvant, ce qui implique un gonflement différentiel générant des contraintes dans l'échantillon qui disparaissent lorsque l'équilibre est atteint donc une concentration constante en solvant dans l'épaisseur de l'éprouvette. Au cours d'un essai de sorption, les zones superficielles sont sollicitées en compression et les zones centrales en traction. La contrainte maximale en traction étant trois fois plus faible que la contrainte en compression. Lors de la désorption, une situation inverse apparaît.

Dans le cas où le matériau à la fois hydrophile et rigide, les contraintes développées par un gonflement différentiel peuvent localement dépasser le seuil au delà duquel apparaît un endommagement irréversible du matériau. Le calcul des contraintes induites par le gonflement différentiel se fait en utilisant les modèles théoriques de Fick ou de Langmuir [31], ou bien en connaissant les paramètres mécaniques, et la relation entre la teneur en eau et le taux de gonflement [32].

### **3.2.3. Endommagement d'un polymère par démixtion**

L'absorption d'eau par un polymère peut être décrite comme étant l'évolution du système vers un équilibre. Ce dernier joue le rôle d'un régulateur. Pourtant, dans certains cas qui semblent violer les lois de la thermodynamique, on a observé que le système dépasse l'état d'équilibre et subit une démixtion. Une partie de l'eau absorbée se retrouve dans des microcavités. Ce phénomène peut avoir des effets défavorables sur le comportement mécanique, ce qui se traduit par un endommagement par démixtion. On distingue deux mécanismes :

- l'un rapide : induit par des chocs thermiques ;
- l'autre lent : induit par la dégradation hydrolytique.

### 3.2.4. Perte d'adjuvants

Il semble que pour certains polymères, lors de l'immersion ou d'aspersion (pluie), on peut observer l'extraction de plastifiants, de stabilisants, et d'autres adjuvants ou celle de leurs produits d'hydrolyse. C'est le cas du phtalate de butyle qui est assez facilement extrait par l'eau. Par ailleurs le phénomène d'extraction peut contribuer à raccourcir considérablement la durée de vie d'un matériau en vieillissement naturel si les adjuvants en question sont des stabilisants.

### 3.2.5. Conséquences sur les propriétés diélectriques

En plus des propriétés mécaniques et chimiques des polymères, d'autres conséquences de l'absorption d'eau peuvent apparaître sur les propriétés diélectriques. La teneur en eau se traduit par une diminution des propriétés diélectriques. En effet, le facteur de dissipation augmente et la rigidité diélectrique diminue [33].

L'humidité a une très grande influence sur la résistivité des matériaux isolants. Cette dernière diminue en fonction de la teneur en eau. La variation de la résistivité en fonction de la teneur en eau  $W_m$  (rapportée au produit supposé sec) peut prendre les deux formes principales suivantes [33] :

$$\rho = \rho_0 \exp(-\alpha \cdot W_m). \quad (\text{II.7})$$

ou bien :

$$\rho = \rho'_0 \cdot W_m^{-n} \quad (\text{II.8})$$

avec :

$\alpha$  et  $n$  : constantes caractéristiques du matériau ;

$\rho'_0$  et  $\rho_0$  : résistivités initiales.

Selon le domaine des valeurs de la teneur en eau, les deux formes de lois peuvent être vérifiées sur le même produit.

## 4. Vieillissement thermique

Sous l'action de la température, combinée ou non avec l'action chimique du milieu ambiant (oxygène, humidité par exemple), des réactions de décomposition spécifiques de chaque polymère interviendront pour dégrader progressivement les caractéristiques du produit initial. Cette dégradation liée à des changements irréversibles du matériau peut réduire rapidement sa durée de vie. Les réactions chimiques qui interviennent sont des réactions de réticulations entre les chaînes, d'oxydation et d'hydrolyse, etc. La cinétique de dégradation dépend de la concentration des différents constituants du polymère [34]. On a, en général, des

phénomènes complexes faisant intervenir simultanément plusieurs réactions chimiques qui varient suivant le type de matériau [35]. La dégradation thermique, de même que la vitesse des réactions chimiques, est accélérée par l'élévation de la température. Les différents mécanismes de dégradation thermique des polymères ont été rapportés dans la littérature [36-38]. Plusieurs modifications de structures des polymères ont été observées: changement de couleur, diminution de volume, fragilisation [39], .... Des chercheurs ont mis en évidence la diffusion de produits, l'augmentation du taux de cristallinité [40,41], la migration de substances hors du matériau (plastifiant par exemple), rupture de chaînes et perte de masse suite à l'émission de gaz [39,42,43]. Le vieillissement thermique peut conduire à la modification des propriétés électriques et mécaniques des polymères [39,41,43-45].

Les caractéristiques du vieillissement ou la stabilité à long terme des isolants solides doivent permettre de répondre à l'une des questions simples suivantes [46]:

- pendant quel temps  $t$  peut-on maintenir un matériau (une isolation) sous une contrainte  $C_0$  ?
- Si l'on désire une durée de maintien ou durée de vie donnée  $t_0$ , quelle contrainte maximale  $C$  sera autorisée?

Pour répondre, il suffit de connaître la relation contrainte - temps  $C = f(t)$ .

Dans le cas où la contrainte est la température, la procédure générale est de déterminer les variations d'une propriété en fonction du temps de vieillissement pour plusieurs températures. La propriété peut être une propriété électrique (rigidité diélectrique par exemple), une propriété mécanique (allongement à la rupture par exemple) ou une perte de masse.

On s'intéresse à la caractéristique de la durée de vie de l'isolant en fonction de l'inverse de la température absolue qui est connue sous le nom de graphique d'endurance thermique. Cette caractéristique est généralement déterminée à partir d'essais de vieillissement accéléré. Le critère de fin de vie d'un isolant correspond à une limite de dégradation de la propriété considérée qui est généralement prise égale à 50% de la valeur initiale [47].

Le graphique d'endurance d'un matériau donné permet de déterminer l'indice de température. Ce dernier est défini par le nombre égal à la température exprimé en degrés Celsius qui correspond à un temps donné normalement égal à 20 000 h [47]. Certains chercheurs prennent ce temps égal à 25 000 h et même 40 000 h [48,49]. Les matériaux isolants solides sont classés suivant leur indice de température.

La durée de vie d'un matériau isolant solide est donnée par l'expression suivante [50]:

$$t = A \exp \frac{B}{T} \quad (\text{II.9})$$

avec

T: température absolue (K) ;

A et B: constantes

$$B = E/K$$

E: énergie d'activation;

K: constante de Boltzman.

### **5. Vieillissement hydrothermique**

Dans ce cas, le matériau est soumis à l'action combinée de la température et de l'humidité. Des travaux de recherche ont montré la dégradation de polymères soumis à un vieillissement hydrothermique [51-55]. Le vieillissement conduit à une augmentation de la masse des éprouvettes, à un changement de couleur, une variation de la structure, une chute des propriétés mécaniques. Une augmentation des pertes diélectriques a été mise en évidence. Des analyses physico-chimiques ont permis de constater une variation des températures de fusion et de transition vitreuse.

La fiabilité d'un système ou d'un composant est la probabilité conditionnelle à un âge donné de remplir sa fonction, à l'intérieur des limites de performances spécifiées pour la période de temps sous des contraintes liées aux conditions de fonctionnement [56].

La rupture diélectrique des isolants solides est un phénomène aléatoire et une étude statistique est indispensable: pour des échantillons placés dans des conditions expérimentales identiques, on n'obtient pas une valeur unique de champ de rupture mais une distribution de valeurs. Il est donc nécessaire de tester un nombre important d'échantillons identiques. Ce caractère statistique pourrait s'expliquer par l'existence d'hétérogénéités (ou de défauts) microscopiques locaux dans le matériau diélectrique. Il est bien connu depuis longtemps, que quelque soient les précautions prises par les fabricants de matériaux isolants, les défauts ne peuvent être éliminés complètement. Ces défauts peuvent exister lors de la mise en œuvre du matériau ou créés durant le vieillissement. Il est donc nécessaire de mener une analyse statistique sur la dispersion des tensions de rupture.

Pour prédire la durée de vie des matériaux isolants solides, plusieurs approches mathématiques (Loi de Gauss, Loi normale, ...etc.) sont utilisés. Le modèle le plus employé pour la caractérisation de la rupture diélectrique de ces matériaux est le modèle de Weibull [57].

## 1. Modèle statistique de Weibull

Les principales lois statistiques utilisées en fiabilité sont les lois : exponentielle, de Weibull, normale et log-normale [58]. Dans le cas des isolants solides, les distributions de Weibull et log-normal sont les plus utilisées [59,60].

### 1.1. Bases du modèle

Il est bien connu que la rupture est un phénomène aléatoire. Le modèle de Weibull est utilisé pour le décrire [61]. A l'origine, le modèle statistique de Weibull a été établi en mécanique [61]. Il exprimait la probabilité de rupture d'une chaîne en fonction de la probabilité de rupture d'un maillon. La rupture d'une chaîne se produit au niveau de son maillon le plus faible quelles que soient les qualités des autres maillons [62].

Ainsi la probabilité de rupture  $P_n$  d'une chaîne de  $n$  maillons s'exprime en fonction de la probabilité  $P$  d'un seul de ces maillons de la façon suivante [62]:

$$P_n = P^n \quad (\text{III.1})$$

Le modèle statistique de Weibull ou la loi de chaîne s'écrit [62] :

$$P(X)=1-\exp\left[-\left(\frac{X-X_S}{X_0}\right)^\alpha\right] \quad X > 0 \quad (\text{III.2})$$

avec :

$P(X)$ : probabilité de rupture ;

$X$ : variable aléatoire ;

$X_0$ : paramètre d'échelle ;

$X_S$ : paramètre de localisation ;

$\alpha$ : paramètre de forme.

Une description détaillée de cette méthode peut être trouvée dans des ouvrages de référence [57,58,62]. Il s'agit d'une bonne image de ce qui se passe dans un isolant solide où un claquage local entraîne la rupture de l'ensemble de l'isolant. Le modèle de Weibull est utilisé pour étudier la rupture diélectrique de matériaux isolants solides [57,63,64].

La prise de conscience de ce que les problèmes de la rupture diélectrique des câbles obéissent à une loi de dispersion de valeurs extrêmes de type de celle qui gouverne les dispersions de rupture de chaînes, a conduit certains auteurs à proposer de représenter la dispersion des champs ou tension de rupture par une loi exponentielle du même type que celle de Weibull [65].

### 1.2. Modèle à deux paramètres

C'est le cas où  $X_S = 0$ , le modèle de Weibull est dit à 2 paramètres. Le formalisme de Weibull s'écrit [65] :

$$P(X)=1-\exp\left[-\left(\frac{X}{X_0}\right)^\alpha\right] \quad X > 0 \quad (\text{III.3})$$

ou sous sa forme linéaire :

$$\text{Log Ln} \frac{1}{1-P(X)} = \alpha \text{Log} X - \alpha \text{Log} X_0 \quad (\text{III.4})$$

Si le phénomène observé suit le modèle de Weibull à 2 paramètres, le graphique où l'on porte en abscisses  $\text{Log} X$  et  $\text{Log Ln} \frac{1}{1-P(X)}$  en ordonnées doit être une droite de pente  $\alpha$ .

### 1.3. Modèle à trois paramètres

C'est le cas où  $X_S \neq 0$ . Introduire un paramètre de localisation consiste tout simplement à translater les courbes de probabilité cumulée selon l'axe des abscisses.

Le modèle de Weibull devient [65] :

$$P(X)=1-\exp\left[-\frac{(X-X_s)^\alpha}{(X_0-X_s)^\alpha}\right] \quad X > 0 \quad (\text{III.5})$$

ou encore sous sa forme linéaire:

$$\text{Log Ln} \frac{1}{1-P(X)} = \alpha \text{Log}(X-X_s) - \alpha \text{Log}(X_0-X_s) \quad (\text{III.6})$$

Dans le cas où l'on porte en abscisses  $\text{Log}(X-X_s)$  et en ordonnées  $\text{Log Ln} \frac{1}{1-P(X)}$ , le diagramme est une droite de pente  $\alpha$ .

## 1.4. Signification des paramètres

### 1.4.1. Paramètre d'échelle $X_0$

Il est destiné à définir une valeur centrale caractéristique de la population étudiée. Ce paramètre correspond à une densité de probabilité maximale.

Pour  $X=X_0$ ,  $\text{Log Ln} \frac{1}{1-P} = 0$  et on déduit  $P=1-\frac{1}{e} = 63,2\%$ .

### 1.4.2. Paramètre de forme $\alpha$

C'est un nombre sans dimension. C'est la pente de la caractéristique du modèle de Weibull dans sa représentation linéaire. Il est, par conséquent, l'image de la dispersion de la variable aléatoire. Plus  $\alpha$  est grand, moins les valeurs sont dispersées [66]. D'après Oudin et al [67] :

- Si  $\alpha < 1$ , on a une « mortalité infantile » des échantillons. Ainsi, les éléments défectueux échouent et tombent en panne tôt et le taux d'échec ou bien la probabilité de claquage diminue avec le temps, cette mortalité est aussi appelée « défauts de jeunesse » [68].
- Si  $\alpha = 1$ , la loi Weibull correspond à la loi de Poisson et la probabilité de claquage est indépendante du temps d'application de la tension.
- Si  $\alpha > 1$ , la probabilité de claquage augmente avec le temps, ce qui correspond à un vieillissement normal, c'est-à-dire à une fatigue initialement nulle et qui s'accroît avec le temps [67,68].

En général, dans le cas des polymères et pour les distributions en temps (essais à champ constant), on a :  $0,5 < \alpha < 3$  [57].

### 1.4.3. Paramètre de localisation $X_s$

La variable  $X_s$  apparaît comme un seuil en dessous duquel le vieillissement se trouve considérablement ralenti, la durée de vie du matériau tend alors vers l'infini, c'est-à-dire  $P(X < X_s) = 0$ . La valeur du seuil est forcément inférieure à la plus faible valeur trouvée expérimentalement.

## 2. Avantages de la loi de Weibull

Après une étude comparative entre la loi de Weibull et la loi Log-normal, Oudin et al ont montré que [67] :

- Pour des probabilités faibles, l'hypothèse de la loi de Weibull correspond à des probabilités plus fortes et par conséquent plus pessimiste que l'hypothèse Laplacienne. On peut considérer que cette prévision plus pessimiste apporte plus de sécurité.
- Le modèle de Weibull permet de retrouver la durée de vie donnée par le modèle de puissance inverse.

## 3. Application du modèle de Weibull à l'étude de la tenue diélectrique des isolants solides

L'application du modèle statistique de Weibull à la caractérisation de la tenue diélectrique des isolants solides repose sur les hypothèses suivantes:

- On considère que le phénomène de claquage est caractérisé par une variable aléatoire à deux dimensions dont l'une est le temps  $t$  au bout duquel se produit la rupture de l'isolant et l'autre le gradient de potentiel  $G$  qui a provoqué cette rupture.
- Le claquage est localisé dans un petit volume du diélectrique. La rupture d'un élément microscopique entraîne la rupture du système isolant sur toute son épaisseur.

Une base de la théorie statistique de la rupture diélectrique a été présentée par Dissado [69].

### 3.1. Tenue diélectrique à long terme

La probabilité de claquage sous champ constant s'écrit [67] :

$$P(G,t) = 1 - \exp(-C t^a G^b) \quad (\text{III.7})$$

avec :

$G$  : champ électrique appliqué ;

$C$  : constante dépendant de la géométrie de l'échantillon;

$t$  : temps au bout duquel se produit le claquage;

a : paramètre de dispersion en temps;

b : paramètre de dispersion en champs

avec :  $n = \frac{b}{a}$ , n étant le coefficient d'endurance électrique.

La relation se met souvent sous la forme explicite [67] :

$$P(G,t,v) = 1 - \exp \left[ - \left( \frac{G}{G_0} \right)^b \left( \frac{t}{t_0} \right)^a \left( \frac{v}{v_0} \right) \right] \quad (\text{III.8})$$

où :

$G_0$ ,  $t_0$  et  $v_0$  sont les valeurs d'échelles respectivement à la contrainte G, à la durée t et au volume v de l'isolant étudié.

### 3.2. Tenue diélectrique à court terme

Dans le cas de vieillissement à court terme, le matériau est soumis à une rampe de champ électrique de vitesse de montée constante V. On peut écrire :

$$G = Vt \quad (\text{III.9})$$

avec :

G : champ électrique appliqué;

V : vitesse de montée de la rampe du champ électrique ;

t : temps au bout duquel se produit le claquage.

En remplaçant t par sa valeur dans l'expression (III.7), on obtient l'expression de la probabilité de claquage :

$$P(G) = 1 - \exp \left[ -C \frac{G^{a+b}}{V^a} \right] \quad (\text{III.10})$$

Le modèle statistique est utilisé pour l'évaluation de la tenue diélectrique des isolants solides sous rampe de tension à vitesse de montée constante [66,70,71].

Dans ce chapitre, nous présentons les dispositifs expérimentaux utilisés pour l'étude du vieillissement hydrothermique du polyamide imide utilisé comme isolant dans les machines électriques. La première partie, concernant la réalisation des éprouvettes, a été faite au niveau du Laboratoire de Physique de l'Entreprise Electro-Industries sise à Azazga. Quant à la deuxième partie, portant sur les essais de vieillissement, elle a été effectuée au Laboratoire de Génie Electrique de l'Université de Tizi-Ouzou.

### 1. Préparation des échantillons

Une bobine de fil de cuivre émaillé, fournie par l'entreprise nationale TREFICUIVRE, a été utilisée pour nos expériences. Elle est constituée de fil de cuivre de diamètre de 0,63 mm et recouverte d'une couche de polyamide imide de grade 2 et de classe C (220°C). La figure IV.1 montre la bobine.



Figure IV.1. Bobine de fil de cuivre émaillé au polyamide imide.

A partir d'une longueur de fil de cuivre de 400 mm, des échantillons en forme de torsade ont été confectionnés à l'aide du tour à bobiné montré à la figure IV.2. La longueur des éprouvettes est de  $125 \pm 5$  mm conformément aux recommandations de la norme NF EN 60317-0-1 [72]. La force de traction exercée et le nombre de tours nécessaires pour la réalisation d'une torsade sont indiqués dans le tableau IV.1. et conformes aux recommandations de la norme NF EN 60317-0-1 [72]. Les deux extrémités ont été, ensuite, dénudées comme le montre la figure IV.3. La boucle de la torsade est coupée en deux points afin d'obtenir entre les deux extrémités une distance suffisante pour éviter le court-circuit lors des essais de rupture diélectrique. Ces deux extrémités ont été écartées (Figure IV.4).



Figure IV.2. Tour à bobiner avec échantillon en cours de réalisation.

| Diamètre nominal du conducteur (mm) |                      | Charge (N) | Nombre de tours de la torsade |
|-------------------------------------|----------------------|------------|-------------------------------|
| Supérieur à                         | Jusqu'à et y compris |            |                               |
| 0,500                               | 0,710                | 7,00       | 12                            |

Tableau IV.1. Charge et nombre de tours appliqués à la torsade [72]



Figure IV.3. Boucle formée de la torsade confectionnée avec le tour à bobiner



Figure IV.4. Eprouvette en forme de torsade réalisée.

## 2. Dispositif expérimentaux

### 2.1. Vieillissement hydrothermique

Plusieurs échantillons confectionnés ont été immergés dans une casserole remplie d'eau. L'ensemble a été introduit dans une étuve à air ventilée et réglée à 100°C comme le montre la Figure IV.5. Après des temps de vieillissement de 100 h, une population de 80 échantillons a été prélevée. Suite à l'évaporation de l'eau, une quantité a été rajoutée de telle sorte que la partie torsadée des échantillons soit complètement immergée. Après chaque prélèvement, l'eau a été complètement remplacée.



Figure IV.5 : Echantillons en cours de vieillissement.

## 2.2. Conditionnement des éprouvettes

Conformément aux recommandations de la norme NF EN 60317-0-1 [72], avant les essais de claquage, les éprouvettes ont été conditionnées dans un dessiccateur contenant du gel de silicone régénéré à neuf, pendant au moins 24 h afin d'éliminer toute présence d'humidité. La figure IV.6 montre des éprouvettes conditionnées dans le dessiccateur.



Figure IV.6 : Echantillons en cours de conditionnement dans un dessiccateur.

## 2.3. Essais de claquage



Figure IV.7. Générateur de haute tension utilisé pour les essais de claquage.

Les expériences ont été réalisées à l'air libre à l'aide d'un générateur de haute tension à courant alternatif, de fréquence 50 Hz exposé à la Figure IV.7. Les essais consistent à soumettre l'échantillon (les deux parties en cuivre dénudées) considéré à une rampe de tension de vitesse constante de 0,5 kV/s jusqu' au claquage. Après rupture, la tension correspondante a été relevée. A la figure IV.8 est présenté un échantillon soumis à l'essai de rupture diélectrique.



Figure IV.8. Echantillon au cours de l'essai de claquage.

Dans ce chapitre, nous exposons les résultats relatifs à l'effet du vieillissement hydrothermique sur la tenue diélectrique du polyamide imide. La première partie est consacrée à une analyse statistique des valeurs de la tension de claquage en utilisant le modèle de Weibull. Dans la deuxième partie sont présentées les variations de la tension de claquage et du facteur de forme en fonction du temps de vieillissement ainsi qu'une discussion et une interprétation des résultats obtenus.

## 1. Traitement statistique des données

Pour l'analyse statistique des valeurs de tension de claquage, nous avons utilisé le modèle de Weibull [61] qui a été décrit au chapitre III. Le calcul des coordonnées des points expérimentaux dans une représentation de Weibull conduit aux expressions suivantes:

$$X_i = \log V_i \quad (\text{V.1})$$

$$Y_i = \log \text{Ln} (1 / (1 - P_i)) \quad (\text{V.2})$$

avec:

$V_i$ : tension de claquage,

$P_i$ : probabilité de rupture.

### 1.1. Calcul des probabilités de rupture

La probabilité de claquage a été calculée en utilisant la relation suivante [59]:

$$P(i) = \frac{i}{N+1} 100\% \quad (\text{V.3})$$

avec:

N: nombre total d'échantillons testés, dans notre cas  $N = 80$

i: rang de la valeur de la tension de claquage après un classement par ordre croissant.

### 1.2. Lissage des points expérimentaux

La statistique de Weibull est une loi à valeurs extrêmes dont la fonction de distribution est par conséquent non symétrique. La méthode des moindres carrés et celle du maximum de vraisemblance sont les plus employées pour le lissage des points expérimentaux. Un lissage réalisé par la méthode des moindres carrés ne serait pas strictement valide d'un point de vue statistique puisqu'il prend en compte les points expérimentaux sans leur accorder un poids statistique particulier. Les estimations au mieux des paramètres seraient plus rigoureuses en utilisant la méthode du maximum de vraisemblance [66].

Les paramètres de Weibull calculés par la méthode des moindres carrés ont été comparés à ceux dérivés de la méthode du maximum de vraisemblance [66,71,73]. D'après les résultats de ces travaux, on peut conclure que:

- les valeurs nominales sont invariantes d'une méthode à une autre ;
- les valeurs du facteur de forme sont assez différentes avec une tendance à de plus grandes valeurs par la méthode des moindres carrés.

Actuellement, les méthodes statistiques permettant le calcul des intervalles de confiance d'une distribution de Weibull reposent sur la méthode du maximum de vraisemblance [74,75]. L'utilisation d'une simple régression linéaire (méthode des moindres carrés) pour estimer les intervalles de confiance sur les différents percentiles de la distribution est incorrect et conduit à une sous-estimation de la largeur des intervalles [76], ce qui peut induire des erreurs d'interprétation. La méthode du maximum de vraisemblance est très utilisée pour le lissage des points expérimentaux dans le tracé des diagrammes de Weibull [63,64,70]. De plus, il a été reporté que cette méthode a été généralisée pour traiter les données de rupture diélectrique [77]. Par conséquent, notre choix s'est porté sur cette méthode.

Le tracé des diagrammes de Weibull consiste à tracer  $\log\text{Ln}(1/(1-P))$  en fonction de  $\log V$ . Ensuite à effectuer un lissage linéaire des points expérimentaux en utilisant la méthode du maximum de vraisemblance. Il faut chercher la meilleure droite de Weibull c'est-à-dire celle qui ajuste au mieux le diagramme dans sa représentation à deux paramètres.

### **1.3. Détermination des facteurs d'échelle et de forme**

La valeur nominale de la tension de claquage ou facteur d'échelle correspondant à une probabilité de 63,2% a été déterminée pour chaque temps de vieillissement. Il en est de même pour le facteur de forme.

## **2. Résultats et discussion**

### **2.1. Diagramme de Weibull à deux paramètres**

Dans les figures V.1 - V.20 sont exposés les diagrammes de Weibull à 2 paramètres. L'équation de la meilleure droite de Weibull a été donnée.

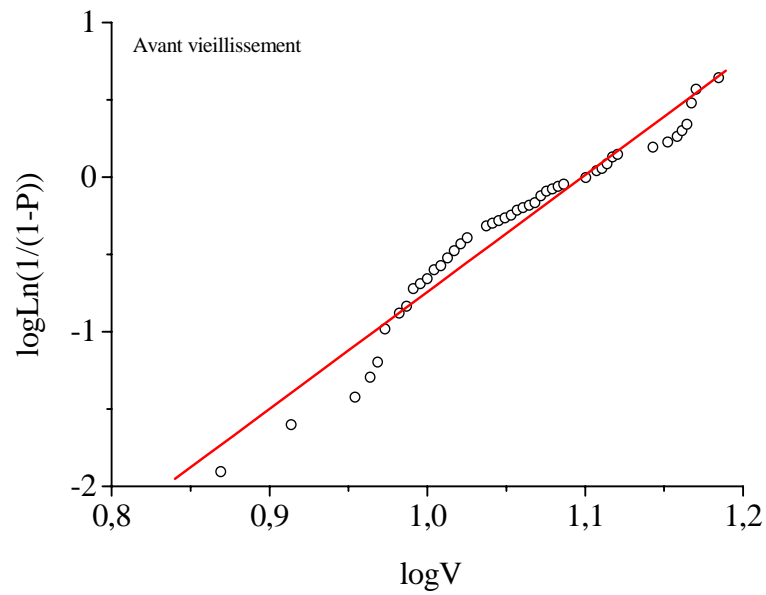


Figure V.1. Diagramme de Weibull de la tension de claquage avant vieillissement  
 $Y = 6,988 X - 7,701$ .

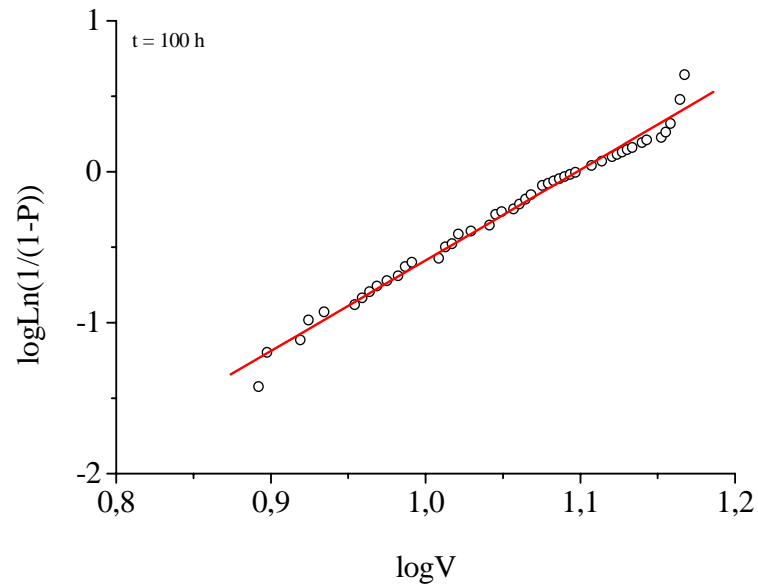


Figure V.2. Diagramme de Weibull de la tension de claquage pour un temps de vieillissement de 100 h  
 $Y = 6,311 X - 6,910$ .

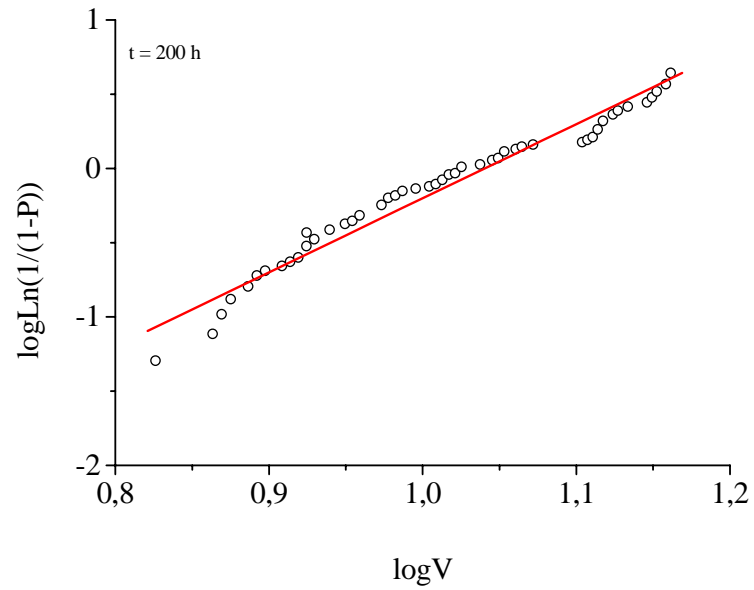


Figure V.3. Diagramme de Weibull de la tension de claquage pour un temps de vieillissement de 200 h

$$Y = 4,707 X - 4,882.$$

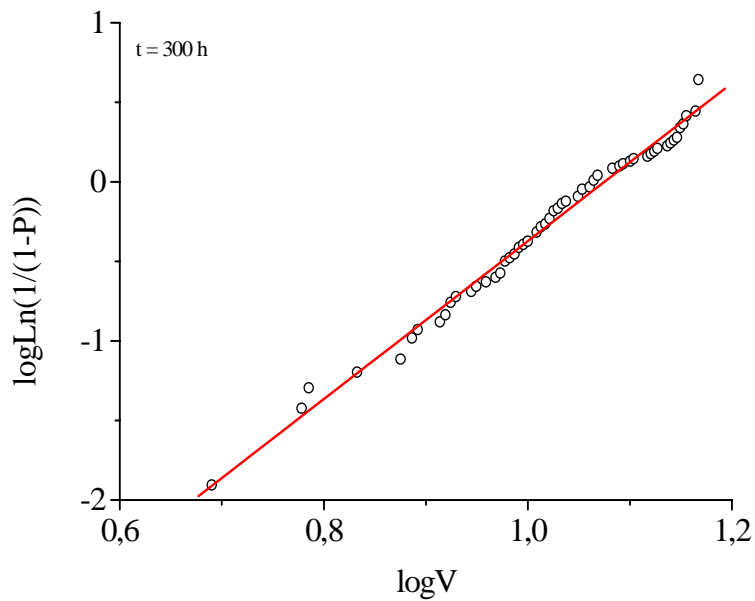


Figure V.4. Diagramme de Weibull de la tension de claquage pour un temps de vieillissement de 300 h

$$Y = 5,359 X - 5,736.$$

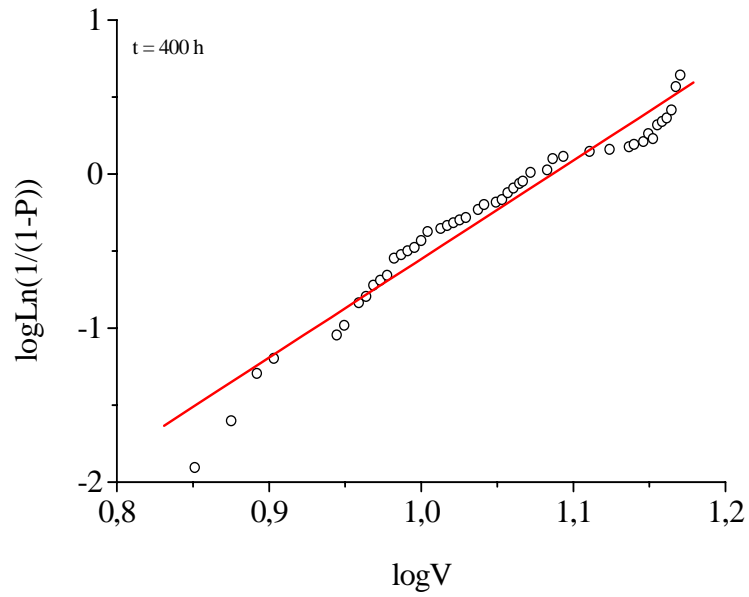


Figure V.5. Diagramme de Weibull de la tension de claquage pour un temps de vieillissement de 400 h

$$Y = 6,162 X - 6,693.$$

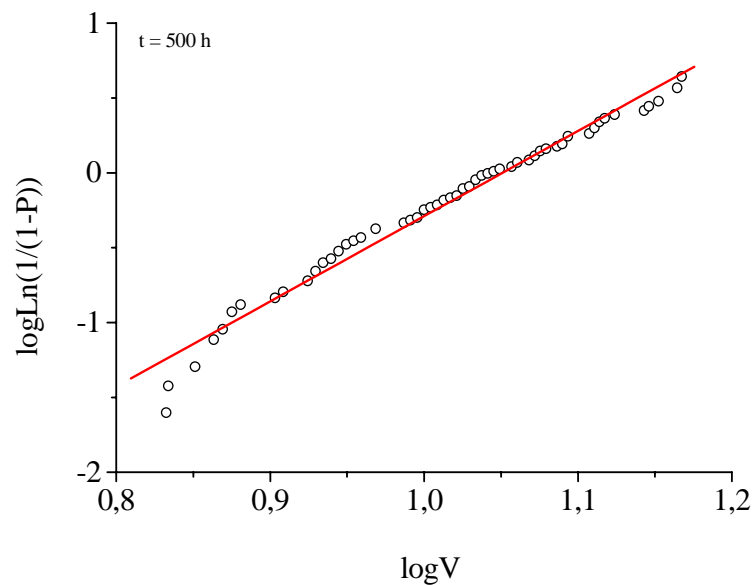


Figure V.6. Diagramme de Weibull de la tension de claquage pour un temps de vieillissement de 500 h

$$Y = 5,609 X - 5,899.$$

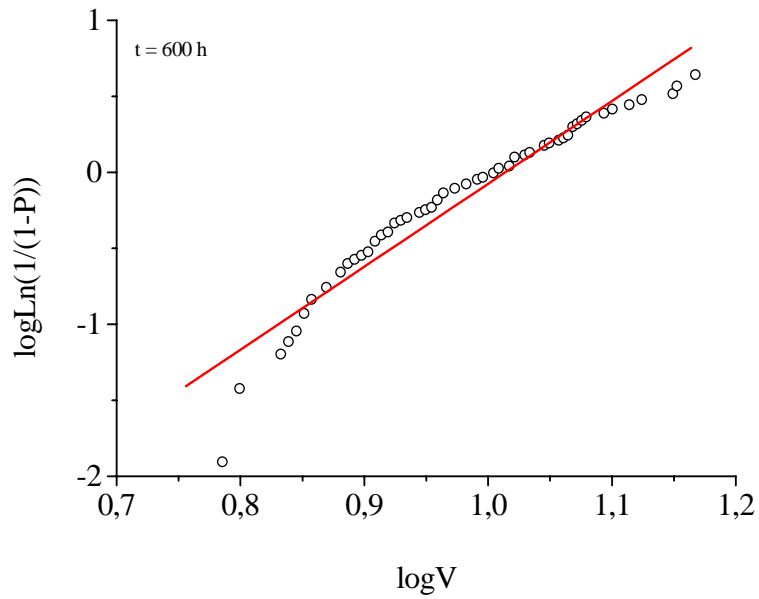


Figure V.7. Diagramme de Weibull de la tension de claquage pour un temps de vieillissement de 600 h

$$Y = 5,020 X - 5,086.$$

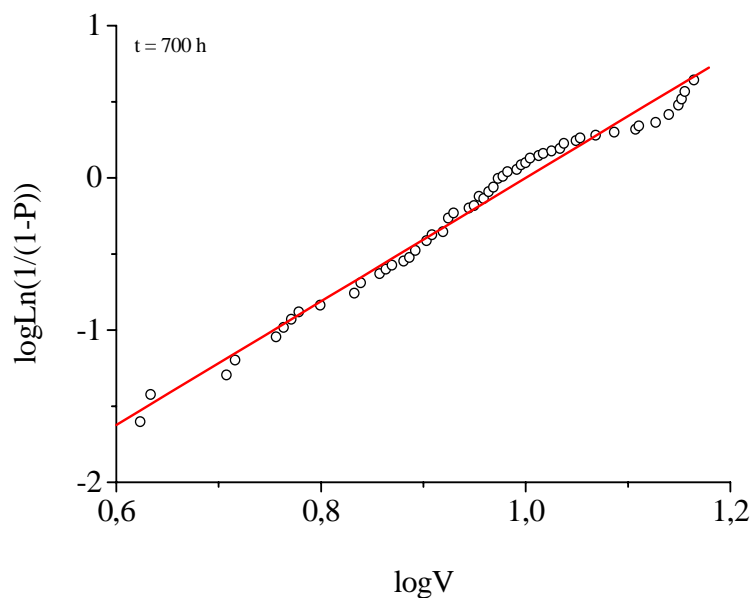


Figure V.8. Diagramme de Weibull de la tension de claquage pour un temps de vieillissement de 700 h

$$Y = 3,879 X - 3,871.$$

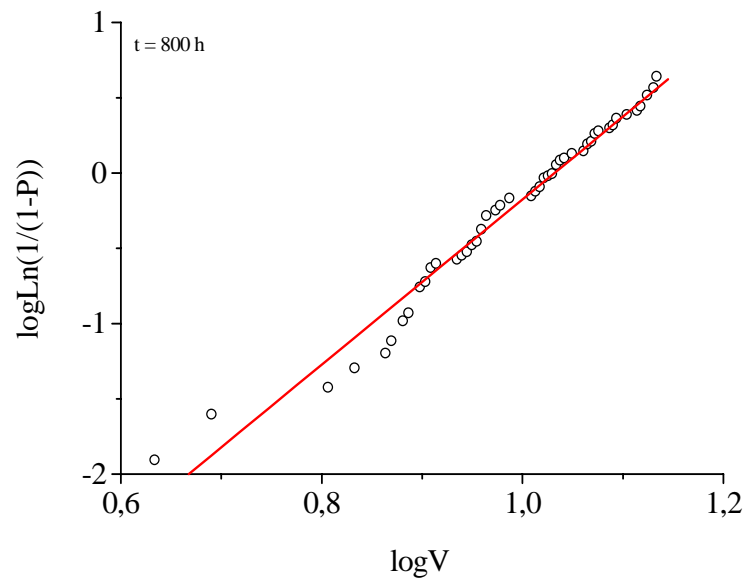


Figure V.9. Diagramme de Weibull de la tension de claquage pour un temps de vieillissement de 800 h

$$Y = 5,938 X - 6,093.$$

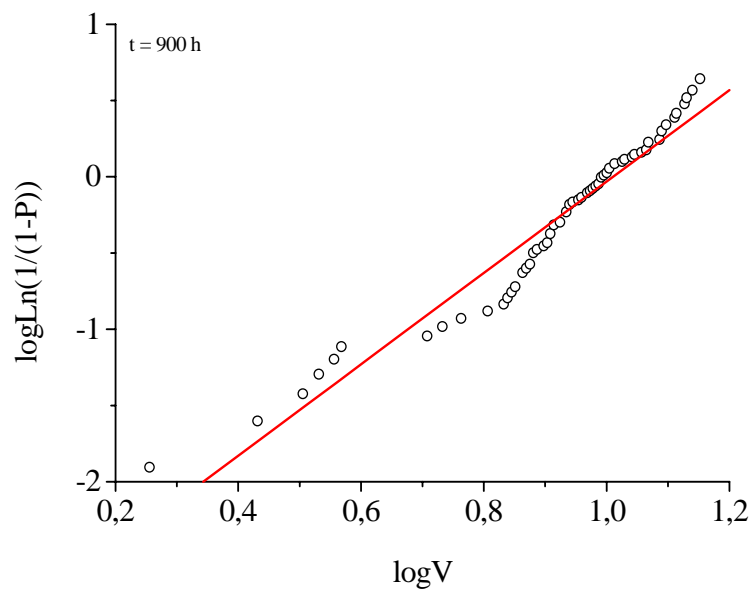


Figure V.10. Diagramme de Weibull de la tension de claquage pour un temps de vieillissement de 900 h

$$Y = 3,037 X - 3,839.$$

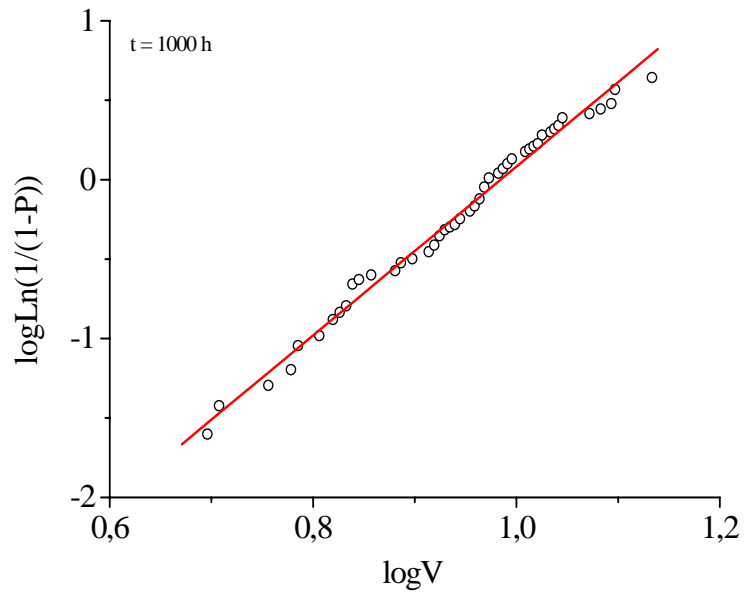


Figure V.11. Diagramme de Weibull de la tension de claquage pour un temps de vieillissement de 1000 h

$$Y = 5,238 X - 5,150.$$

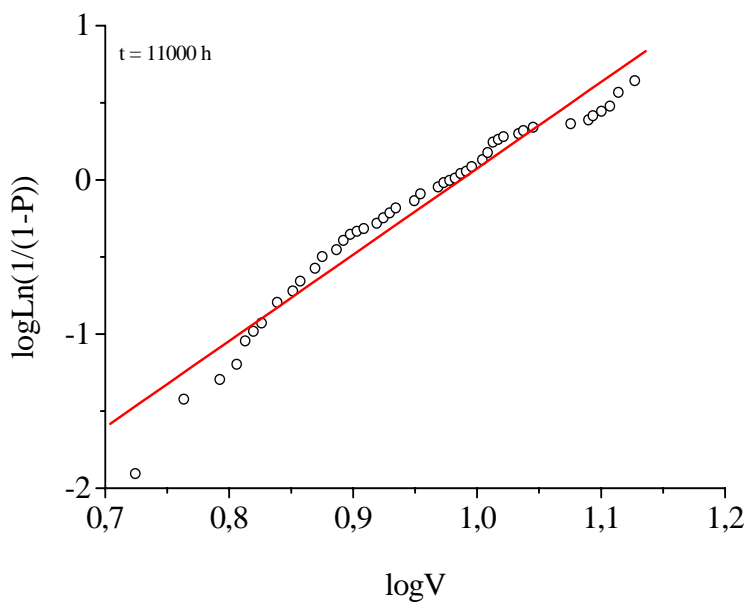


Figure V.12. Diagramme de Weibull de la tension de claquage pour un temps de vieillissement de 1100 h

$$Y = 5,084 X - 5,012.$$

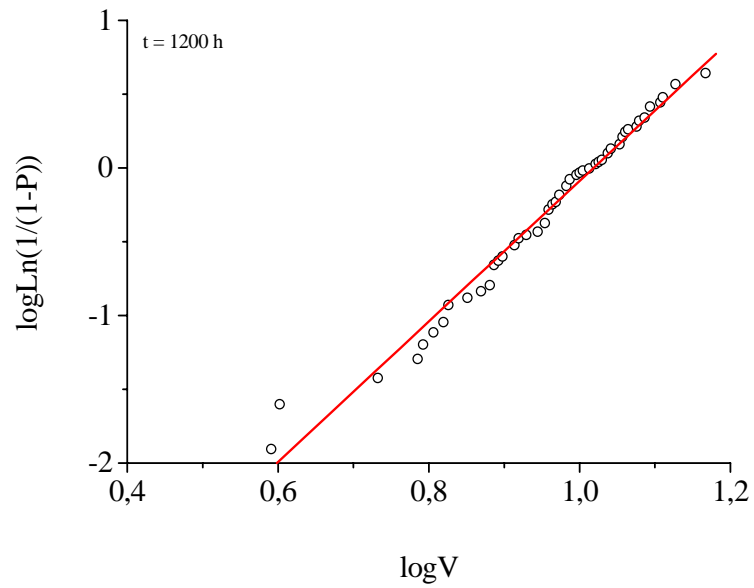


Figure V.13. Diagramme de Weibull de la tension de claquage pour un temps de vieillissement de 1200 h

$$Y = 5,175 X - 5,263.$$

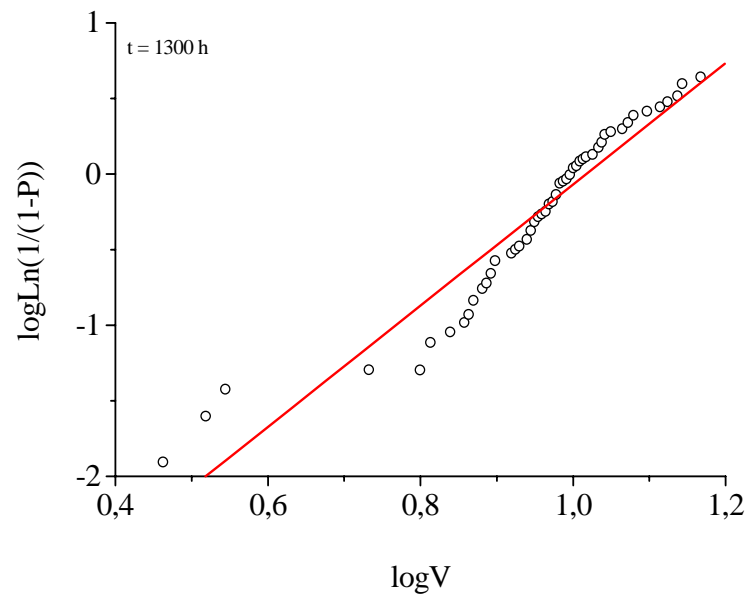


Figure V.14. Diagramme de Weibull de la tension de claquage pour un temps de vieillissement de 1300 h

$$Y = 4,937 X - 4,976.$$

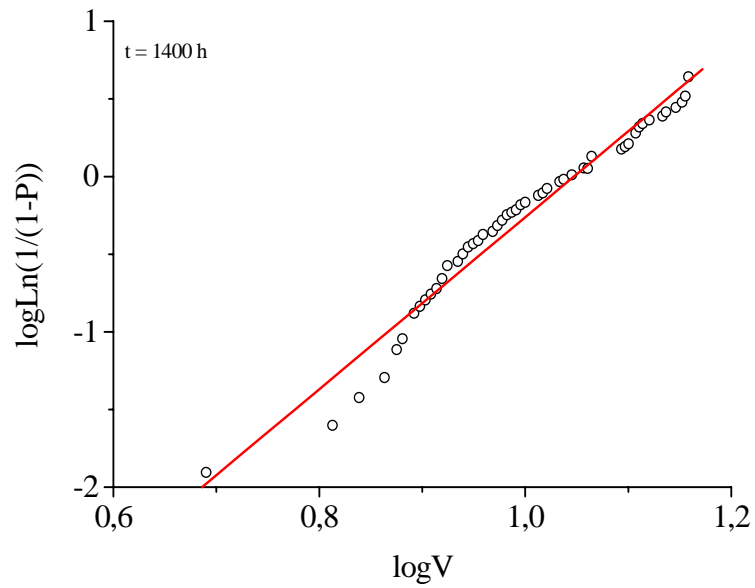


Figure V.15. Diagramme de Weibull de la tension de claquage pour un temps de vieillissement de 1400 h

$$Y = 5,371 X - 5,629.$$

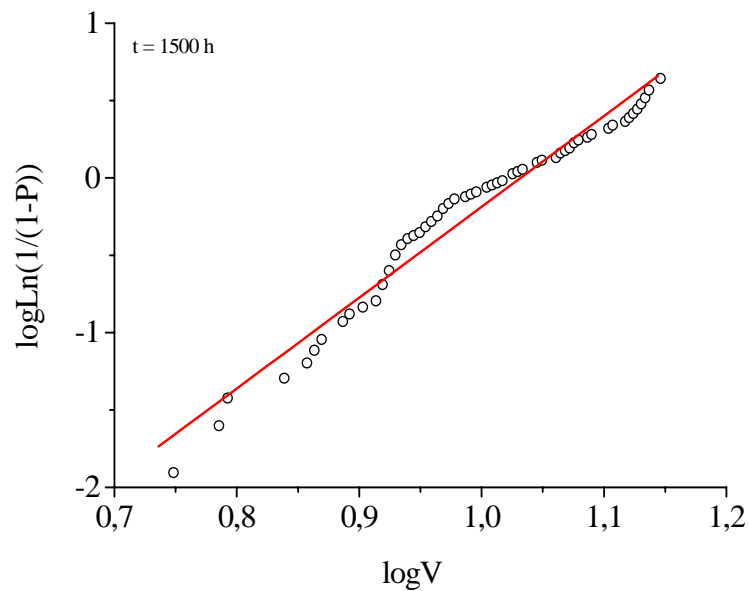


Figure V.16. Diagramme de Weibull de la tension de claquage pour un temps de vieillissement de 1500 h

$$Y = 5,481 X - 5,640.$$

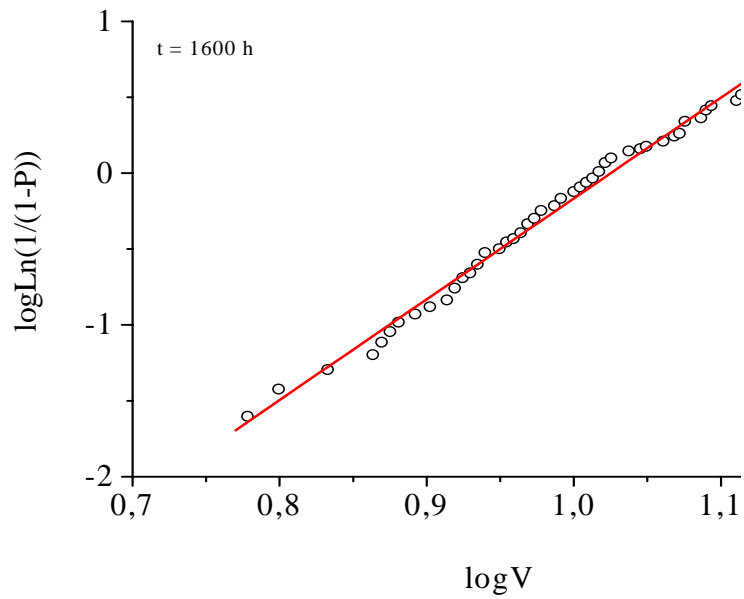


Figure V.17. Diagramme de Weibull de la tension de claquage pour un temps de vieillissement de 1600 h

$$Y = 6,542 X - 6,698.$$

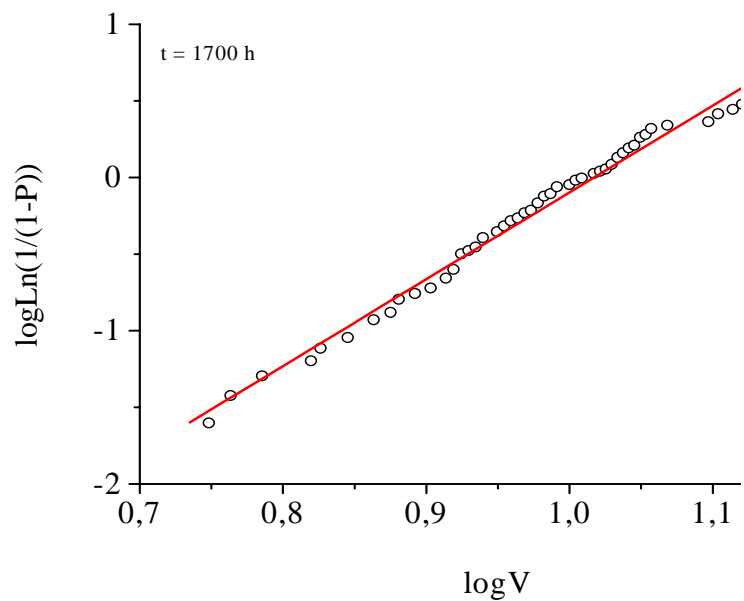


Figure V.18. Diagramme de Weibull de la tension de claquage pour un temps de vieillissement de 1700 h

$$Y = 5,420 X - 5,504$$

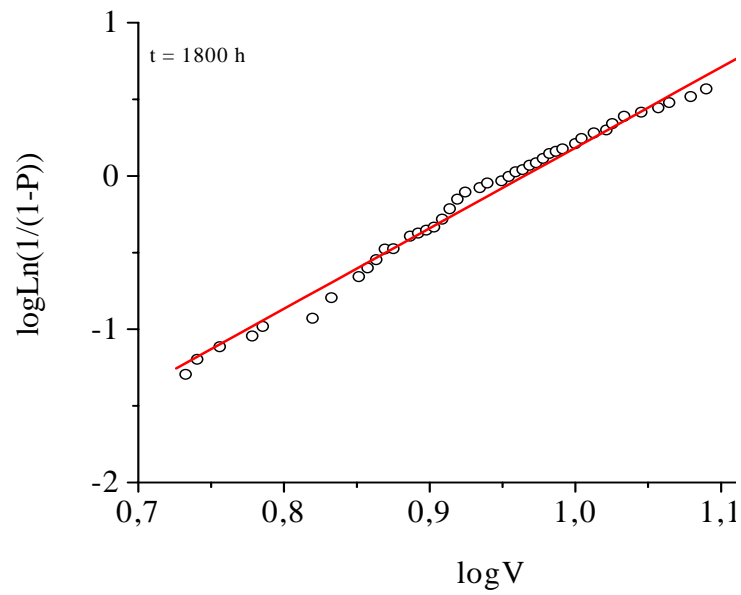


Figure V.19. Diagramme de Weibull de la tension de claquage pour un temps de vieillissement de 1800 h

$$Y = 4,639 X - 4,456.$$

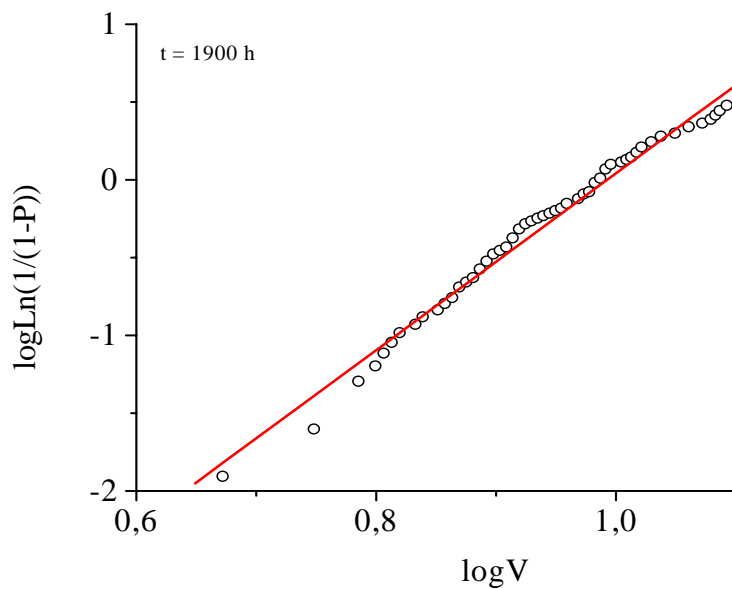


Figure V.20. Diagramme de Weibull de la tension de claquage pour un temps de vieillissement de 1900 h.

$$Y = 5,234 X - 5,201.$$

## 2.2. Variation de la tension nominale de claquage en fonction du temps de vieillissement

A la figure V.21 est exposée la variation de la tension nominale de claquage en fonction du temps de vieillissement. Nous constatons que la caractéristique présente 04 maximums correspondant respectivement à  $t = 384$  h,  $t = 805$  h,  $t = 1206$  et  $1412$  h.

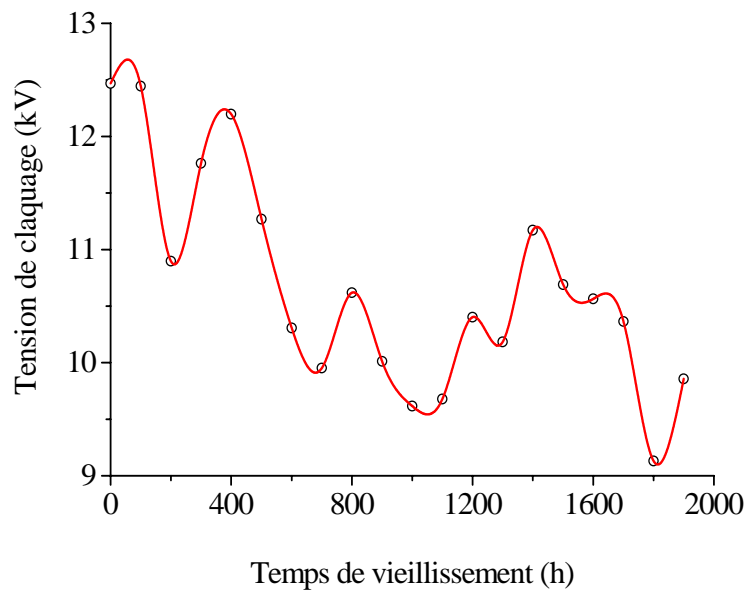


Figure V.21. Variation de la tension de claquage en fonction du temps de vieillissement.

## 2.3. Variation du facteur de forme en fonction du temps de vieillissement

L'évolution du facteur de forme en fonction du temps de vieillissement est présentée à la figure V.22. La courbe présente plusieurs maximums après des temps de vieillissement de 391 h, 799 h, 1033 h et 1594 h.

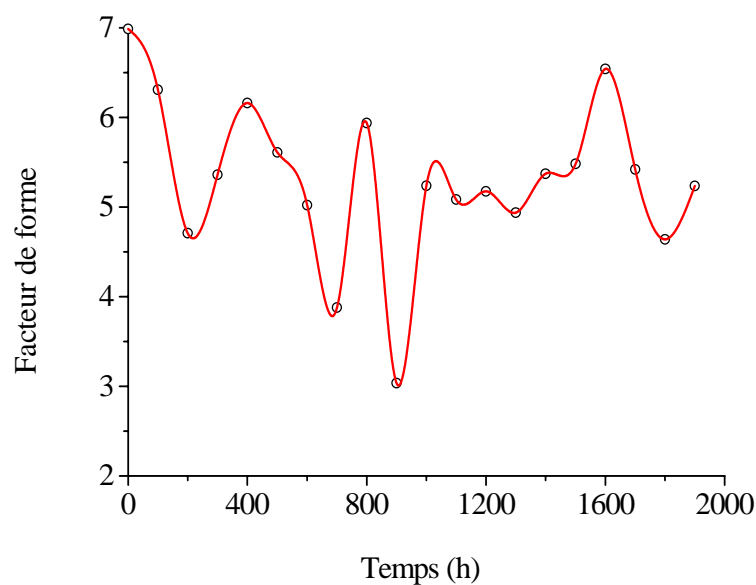


Figure V.22. Variation du facteur de facteur en fonction du temps de vieillissement.

Chauvet a montré, au cours de son étude sur la rupture diélectrique à court terme du polyéthylène, que plus le facteur de forme est grand, moins la distribution est dispersée [66]. Nous pouvons conclure que la distribution des points expérimentaux est plus dispersée dans la cas du temps de vieillissement de 904 h correspondant à un facteur de 3,026. De même, la distribution est moins dispersée avant vieillissement dont le facteur de forme est de 6,831.

### 3. Discussion et essai d'interprétation

D'après nos résultats, il ressort :

- La dispersion des points expérimentaux varie d'une distribution à une autre. Nous constatons, dans la plupart des cas, que les données sont plus dispersées pour les faibles probabilités.
- La caractéristique donnant la valeur nominale de la tension de claquage en fonction du temps de vieillissement présente plusieurs pics attribués à la relaxation des dipôles présents à l'intérieur du polymère. La variation de la tension de rupture est de 28%. L'augmentation de la tension de claquage est due à la réticulation du polymère. Quant à sa diminution, elle est attribuée à la diffusion de molécules d'eau à l'intérieur du matériau qui conduit à une plastification de l'isolant.
- Le claquage se fait par arborescence électrique ou arborescence électrochimique due à la présence d'eau dans le polymère. En effet, l'eau peut diffuser dans le matériau et produirait un gonflement de ce dernier conduisant à la création de fissures. Quand le diélectrique est soumis à un champ électrique, il y a création d'une arborescence d'eau (électrochimique) conduisant à la rupture. La présence de molécules d'eau facilite l'initiation d'arborescence. La diffusion de l'eau est accélérée par la température.
- La courbe donnant la variation du facteur de forme en fonction du temps de vieillissement traduit la répartition aléatoire des défauts au sein du diélectrique. On sait que ces défauts existent à l'intérieur de l'isolant solide ou sont créés durant le vieillissement. La variation du facteur de forme est de 56%.
- La dégradation du polymère est caractérisée par l'apparition de tâches sombres à la surface des échantillons. Nous avons remarqué un changement de l'état de surface des éprouvettes vieilles.

Le travail présenté, dans ce mémoire, s'inscrit dans le cadre de la caractérisation des isolants polymères soumis à l'action combinée de l'humidité et de l'eau. L'évolution de la tension de claquage du polyamide imide en fonction du temps de vieillissement hydrothermique a été étudiée. Les valeurs de la tension de claquage ont été analysées statistiquement en utilisant le modèle de Weibull.

L'analyse statistique des valeurs de la tension de rupture diélectrique conduit à la détermination des paramètres d'échelle et de forme correspondant à chaque temps de vieillissement. Le lissage des points expérimentaux a été effectué en utilisant la méthode du maximum de vraisemblance. Pour chaque distribution de points expérimentaux, la meilleure droite de Weibull a été déterminée.

L'étude montre que la tension de claquage du polyamide imide varie en fonction du temps de vieillissement. La caractéristique présente plusieurs pics attribués à la relaxation des dipôles présents au sein du matériau. La variation de la tension de rupture a atteint 28%. La dispersion des points expérimentaux varie d'une distribution à une autre. Dans la plupart des cas, les données sont plus dispersées pour les faibles probabilités.

L'augmentation de la tension de claquage est due à la réticulation du polymère. Quant à la diminution, elle est attribuée à la diffusion de molécules d'eau à l'intérieur du matériau conduisant à une plastification de l'isolant. La rupture diélectrique se fait par arborescence électrique ou arborescence électrochimique due à la présence d'eau dans le polymère. En effet, l'eau peut diffuser dans le matériau et produirait un gonflement produisant des fissures. La présence de molécules d'eau facilite l'initiation d'arborescence. La diffusion de l'eau est accélérée par la température.

La courbe donnant la variation du facteur de forme en fonction du temps de vieillissement traduit la répartition aléatoire des défauts au sein du diélectrique. On sait que ces défauts existent à l'intérieur du diélectrique solide ou sont créés durant le vieillissement. La distribution des points expérimentaux est plus dispersée dans la cas du temps de vieillissement de 904 h. Par contre, la distribution est moins dispersée avant vieillissement. La variation du facteur de forme est de 56%. La dégradation du polymère est caractérisée par l'apparition de tâches noires à la surface des échantillons.

Comme perspectives, nous envisageons compléter ce travail par des essais à des temps de vieillissement plus importants jusqu'à la dégradation complète du polymère. L'étude statistique peut aussi être complétée par le tracé des intervalles de confiance. Afin de donner une interprétation au mécanisme de dégradation, des analyses physico-chimiques sont nécessaires : spectroscopie infrarouge (FTIR), analyse enthalpique différentielle (DSC), analyse thermogravimétrique (ATG) et microscope électronique à balayage (MEB), etc.

- [1] H. H. Nicol, H. Ehritopher, J. Plummer, P. Decroly, *Traité, des Matériaux, Matériaux polymères propriétés mécaniques et physiques*, Presses Polytechniques et Universitaires, Romande, 2001.
- [2] M. F. Ashby, David R.H. Jones, *Matériaux, microstructure et mise en œuvre*, édition Dunod, Septembre 1999.
- [3] P. Koechlin, *Emaux isolants (fils émaillés)*, Techniques de l'ingénieur, D 2630, 1983.
- [4] M. Leca, O. Segarceanu, S. Serban, Solubility, curing and heat resistance of some ester-imide oligimers as a function of the nature and content of some comonomers, *Thermochimica Acta*, Vol. 299, pp. 153-160, 1997.
- [5] CEI 172, *Méthode d'essai pour la détermination de l'indice de température des fils de bobinage émaillés*, 1981.
- [6] R. Fournié, *Les isolants en électrotechnique, essais, mécanismes de dégradation, applications industrielles*, édition Eyrolles, 1990.
- [7] M.P. Stevens, *Polymers chemistry, an introduction*, New York, Oxford University Press, 1999.
- [8] M. Sukumar, D. Sajal, Synthesis and properties of polyester-imides and their isomers, *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 26, pp. 957-978, 1981.
- [9] CEI 317-8, *Spécifications pour types particuliers de fils de bobinage. Fil de bobinage de section circulaire en cuivre émaillé avec polyester-imide, classe 180*, 1988.
- [10] W.P. Chiang, W.C. Chiang, Condensation polymerization of multifunctional monomers and properties of related polyester resins. Thermal properties of polyester-imide varnishes, *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 35, pp. 1433-1439, 1988.
- [11] C. Marais, G. Villoutreix, *Mise en oeuvre et propriétés de la résine polyimide PMR-15*, *Matériaux et Techniques*, 1996.
- [12] M. Nedjar, Investigation in thermal endurance of polyesterimide used in electrical machines, *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 121, pp. 2886-2892, 2011.
- [13] M. Nedjar, Y. Mecheri, A. Lamure, M. Aufray, C. Drouet, Effect of moisture on the breakdown voltage of polyesterimide used in electrical machines, 2010 Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, pp. 74-77, 2010.
- [14] M. Nedjar, S.H. Ould Ouali, Statistical investigation of short-term dielectric breakdown of polyesterimide and polyamide imide used in electrical machines, *Annales de Chimie, Science des Matériaux*, Vol.36 No.2, pp.59-72, 2011.

- [15] J. E. Mark, Polymer Data Handbook, Oxford University Press, Inc., 1999.
- [16] G. V. Cekis, Modern plastics, Mid-October Encyclopedia issue, 1990.
- [17] F. Kerkarine, Effet de l'humidité sur la tenue diélectrique du polyamide imide, Mémoire de Magister, Université de Tizi-Ouzou, 2010.
- [18] J. Verdu, Vieillissement physique des plastiques, Techniques de l'ingénieur, A 3 150, 1990.
- [19] J. Verdu, Vieillissement des plastiques, Edition AFNOR, Paris, 1984.
- [20] B. Dewimille, Vieillissement hygrothermique d'un matériau composite fibre de verre-résine époxyde, thèse ENSMP, Juillet 1981.
- [21] J. Mercier, Prise en compte du vieillissement et de l'endommagement dans le dimensionnement de structures en matériaux composites, Thèse de Doctorat, Ecole des mines de Paris, 2006.
- [22] F.N. Kelley, F. Bueche, Viscosity and glass temperature relations for polymer-diluents systems, Journal of Applied Polymer Science, V 50, pp. 549-556, 1961.
- [23] D. Colombini, J.J.Martinez-Vega, G.Merle, Dynamic mechanical investigations of the effects of water sorption and physical ageing on an epoxy resin system, polymer 43, pp. 4473-4485, 2002.
- [24] M. E. R. Shanahan, Water absorption and desorption in an epoxy resin with degradation, Journal Polymer Sciences, Part B: Polymer physics, Vol 35, pp. 2659-2670, 1997.
- [25] J. Verdu, Action de l'eau sur les plastiques, AM 3 151, Techniques de l'ingénieur, 2000.
- [26] D. W. Krevellen, Properties of polymers, Elsevier, pp. 420-25, 1976.
- [27] A. C. Loos, G. S. Springer, Moisture absorption of graphite-Epoxy composition immersed in liquids and in humid air, Journal of Applied Polymer Science, Vol 13, pp. 131, 1979.
- [28] C. E. Browing, The mechanism of elevated temperature property losses in high performance structural epoxy resin matrix after exposure to high humidity environments, Polymer Engineering and Science, USA, 18 N°01, pp. 16-24, 1978.

- [29] E. L. Mckgue, J. D. Reynolds, J. E. Halkias, Swelling and glass transition relations for epoxy matrix in humid environments, *Journal of Applied Polymers Science*, USA, pp. 1643-57, 1978.
- [30] M. Varma, *Die makromol, chimie*, pp. 130-261, 1969.
- [31] P. Bonniau, A. R. Bunsell, A comparative study of water absorption theories applied to glass epoxy composite, *Journal of Applied Polymer Science*, USA, pp. 872, 1981.
- [32] S. Gazit, Dimensional changes in glass filled epoxy a result of absorption of atmospheric moisture, *Journal of Applied Polymer Sciences*, USA, pp. 3547-58, 1978.
- [33] J. C. Dubois, *Propriétés diélectriques des plastiques*, *Techniques de l'ingénieur*, AM 3140, 2001.
- [34] Iran N. Levine, *Physical chemistry*, Mc Graw-Hill, 1978.
- [35] Derek R. Augood, Dielectric aging – overview and comment, *Conference Record of 1978 IEEE International Symposium on Electrical Insulation*, June 12-14 1978, pp. 17-21.
- [36] P. Paloniemi, Theory of Equalization of thermal ageing processes of electrical insulating materials in thermal endurance tests, I: Review and theoretical basis of test methods and chemical and physical aspects of ageing, *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, Vol. EI-16 No.1, February 1981, pp. 1-6.
- [37] R. Bartnikas, *Electrical properties of solid insulating materials: measurement techniques*, *engineering dielectrics*, volume IIB, chapter 5, 1987.
- [38] D.J. Carlsson, D.M. Wiles, Degradation, in *Encycl. Polym. Sc. Eng.*, Vol.4, second edition, John Wiley, New York, 1986, pp. 630-696.
- [39] M. Nedjar, A. Boubakeur, A. Bérroual, M. Bournane: Thermal aging of polyvinyl chloride used in electrical insulation, *Annales de Chimie, Sciences des Matériaux*, 2003, pp. 97-104.
- [40] J.F. Morel, Phung Nhu Dung, J.F. Joly, Thermal aging of Bi-Axially PET films: relation between structural changes and dielectric behavior, *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, Vol. EI-15 No.4, August 1980, pp.335-339.
- [41] J.F. Bellomo, T. Lebey, J.M. Oraison, F. Peltier, Comparative study of the influence of the thermal ageing on PET and PEN polymers, *1995 IEEE 5<sup>th</sup> International Conference on Conduction and Breakdown in Solids Dielectrics*, pp. 442-446.

- [42] D. Braun, Recent developments in degradation and stabilisation, *Pure and Applied Chemistry*, 1981, Vol. 53, pp. 549-506.
- [43] G.C. Montanari, Thermal aging of EPR cables, *Second International Conference on Properties and Dielectrics Materials*, 1988, pp. 320-324.
- [44] T. Zaharescu, M. Giuginca, Influence of the thermal degradation of synthetic polymers (EPR, EPDM) on electrical characteristics, *1995 IEEE 5<sup>th</sup> International Conference on Conduction and Breakdown in Solids Dielectrics*, pp. 473-476.
- [45] M. Nedjar, A. Bérroual, A. Boubakeur, Influence of thermal aging on the electrical properties of poly (vinyl chloride), *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 102, pp. 4728-4733, Dec. 2006.
- [46] B. Fallou, Comportements spécifiques des matériaux isolants soumis aux diverses contraintes (chaleur, champ électrique, radiations). Résumé des connaissances actuelles et normalisation, *RGE 10/85*, Octobre 1985, pp. 756-768.
- [47] IEC 216, Guide for Determination of Thermal Endurance Properties of Electrical Insulating Materials. Part 1, 1974.
- [48] K.M. Mathes: Thermal Aging of Electrical Insulation. Technology and Standardization, *IEEE International Conference on Properties and Applications of Dielectric Materials*, 1985, pp. 299-307.
- [49] R. A. Dixon: Thermal Aging Predictions from an Arrhenius Plot With Only one Data Point, *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, Volume EI-15, 1980, pp. 331-334.
- [50] T.W. Dakin, Electrical Insulation Deterioration Treated as a Chemical Rate Phenomenon, *A.I.E.E Transactions*, Vol. 67, 1948, pp. 113-122.
- [51] H. Djidjelli, M. Kaci, T. Sadoun, D. Benachour, J. Farenc, J.J. Martinez –Vega, Effect of hydrothermic ageing on dielectric and mechanical properties of rigid poly(vinyl cholid), *Macromolecular Materials and Engineering*, pp.407-411, 2001.
- [52] H. Djidjelli, M. Kaci, J.J. Martinez –Vega, D. Benachour, Effects of hydrothermal ageing on the thermal behaviour of poly(vinyl cholid) filled with wood flour, *Polymer International*, pp.1760-1765, 2004.
- [53] H.P. Abeysinghe, W. Edwards, G. Pritchard, G.J. Swampillai, *Polymer*, Vol. 23, pp.1785-1790, 1982.

- [54] A. Apicella, C. Migliaresi, I. Nicolais, L. Iaccarino, S. Roccotelli, The water ageing of unsaturated polyester-based composites: influence of resin chemical structure, *Composites*, pp. 387-392, 1983.
- [55] L.L. Sobrinho, M. Ferreira, F. L. Bastion, The effects of water absorption on an ester vinyl resin system, *Materials Research*, Vol.12, No.3, pp.253-261, 2009.
- [56] I. Bazovski, *Fiabilité, théorie et pratique de la sureté de fonctionnement*, Editions Dunod, 1966.
- [57] L.A. Dissado, J.C. Fothergill, *Electrical degradation and breakdown in polymers*, G.C. Stevens, 1992.
- [58] A. Polard, C. Rivoire, *Fiabilité et statistiques prévisionnelles : La méthode de Weibull*, Editions Eyrolles, 1971.
- [59] *IEEE Guide for the statistical analysis of electrical insulation voltage endurance data*, ANSI/ IEEE Std. 930, 1987.
- [60] G.C. Montanari, G. Pattini, L. Simoni, Long term behaviour of XLPE insulated cable, *IEEE Trans. On Power Delivery*, Vol.2, pp.596-602, 1987.
- [61] W. Weibull, A statistical distribution of wide applicability, *Journal of applied Mechanics*, Vol.18, pp.293-297, 1951.
- [62] W.D. Wilkens, *Statistical methods for the evaluation of electrical insulating systems*, Chapitre 7, *Engineering dielectrics*, Vol. II-B, *Electrical properties of solid insulating materials: measurement techniques*, Editor R. Bartnikas, pp. 491-529, 1987.
- [63] M. Nedjar, A. Béréal, Electrical aging of polyurethane under AC voltage, *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 109, pp. 789-794, 2008.
- [64] M. Nedjar, A. Béréal, Weibull statistics in electrical aging of polyesterimide under AC voltage, *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 116, pp. 1593-1596, 2010.
- [65] *Commission Electrotechnique Internationale, Comité d'étude N°63, Systèmes d'isolation : évaluation de l'endurance électrique des systèmes d'isolation électrique, procédure d'évaluation basée sur des distributions de valeurs extrêmes*, Septembre 1989.
- [66] C. Chauvet, *Mise au point d'une méthodologie pour les essais de rupture à court terme en vue de la caractérisation des isolants synthétiques*, Thèse de doctorat, Paul Sabatier, Toulouse, 1992.

- [67] J.M. Oudin, Y. Reyroll, H. Thevenon, Théorie statistique de claquage électrique, RGE.N°4, pp. 430-436, 1968.
- [68] N. Khaleche, A. Boubakeur, A. Ouabdeslam et C.Laurent, Application de la loi de Weibull aux phénomènes de vieillissement et de l'évaluation de la durée de vie du polychlorure de vinyle, 2<sup>ème</sup> CEA94, Algérie, Novembre 1994.
- [69] L.A. Dissado, Theoretical basis of the dielectric breakdown, J. Phys. D Appl. Phys, Vol. 23, pp. 1582-1591, 1990.
- [70] M. Nedjar, Evaluation de la tenue diélectrique à court terme et à long terme des polymères utilisés dans les dispositifs haute tension, Thèse de Doctorat ès sciences physiques, Université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou, 2003.
- [71] C. Chauvet, C. Laurent, Weibull statistics in short-term dielectric breakdown of thin polyethylene films, IEEE Trans. on Elect. Insul, Vol 28, pp. 18-29, 1993.
- [72] Norme NFC EN 60317-0-1, Spécifications pour types particuliers de fils de bobinage. Partie 0 : Prescriptions générales, section, fil de section circulaire en cuivre émaillé, juin 2000.
- [73] F. Bournane, M. Bournane, M. Nedjar, A. Bérroual, Apport de la loi de Weibull à la compréhension de la rupture diélectrique des isolants solides, Algerian Journal of Technology, Série B, Numéro Spécial, Proceedings de la 4<sup>ème</sup> Conférence Nationale sur la Haute Tension, 16-17 Janvier 2002, pp.103-106.
- [74] J.F. Lawless, Confidence Interval estimation for the Weibull and extreme-value distribution, Technometrics, Vol. 20, N° 4, November 1978, pp. 355-363.
- [75] J.F. Lawless, Construction of tolerance bounds for the extreme-value and Weibull distributions, Technometrics, Vol. 17, N° 2, May 1975, pp. 255-261.
- [76] G.C. Stone, J.F. Lawless, The application of Weibull statistics to insulation ageing tests, IEEE Trans. on Elect. Insul., Vol. EI-14, N°5, October 1979, pp. 233-239.
- [77] J. Jacquelin, Generalization of the method of maximum likelihood, IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol. 28 No.1, pp. 65-72, 1993.