



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

## THESE DE DOCTORAT EN SCIENCES EN ELECTROTECHNIQUE

Présentée par

**KIRECHE Nora**

Thème

Etude de l'interaction décharge électrique/surface  
d'un solide isolant

Soutenue le 11 Juillet 2019 devant le jury composé de :

|     |                |           |                         |            |
|-----|----------------|-----------|-------------------------|------------|
| Mr  | NEDJAR         | Mohamed   | Professeur, UMMTO       | Président  |
| Mme | BITAM-MEGHERBI | Ferroudja | Professeur, UMMTO       | Rapporteur |
| Mr  | BOUDISSA       | Rabah     | Professeur, UAM, Béjaïa | Examineur  |
| Mr  | MOULAI         | Hocine    | Professeur, USTHB       | Examineur  |
| Mr  | BOUAZABIA      | Slimane   | Professeur, USTHB       | Examineur  |
| Mr  | MOUDOUD        | Mustapha  | MCA, UMMTO              | Examineur  |

## REMERCIEMENTS

Mes remerciements s'adressent en premier lieu à Madame BITAM-MEGHERBI Ferroudja, Professeur à l'Université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou, pour son investissement et sa disponibilité pour ce travail.

Je remercie Monsieur RONDOT Sébastien, Maître de Conférences à l'UFR Sciences Exactes et Naturelles de Reims pour son aide et sa contribution dans la réalisation de certaines techniques expérimentales relatives à ce travail.

Je remercie Monsieur JBARA Omar professeur à l'UFR Sciences Exactes et Naturelles de Reims pour m'avoir accueillie dans son équipe en mettant à ma disposition le matériel nécessaire à la réalisation des expériences et pour son aide.

Je remercie Monsieur GILLIOT Mickael, Maître de Conférences à l'UFR SEN/IUT DE Reims pour son aide.

Je remercie Monsieur PATAT Jean-Marc, Technicien à l'UFR Sciences Exactes et Naturelles de Reims pour son aide.

Je remercie Monsieur NEDJAR Mohamed, Professeur à l'Université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou, de m'avoir fait l'honneur de présider le jury de thèse.

Mes remerciements s'adressent à Monsieur, BOUDISSA Rabah, Professeur à l'université Abderrahmane Mira de Béjaïa, pour avoir accepté d'examiner ce travail.

J'adresse également mes remerciements à Monsieur MOULAI Hocine, Professeur à l'Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediene, pour l'honneur qu'il me fait en acceptant de juger ce travail.

Je tiens à exprimer à Monsieur BOUAZABIA Slimane, Professeur à l'Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediene., mes remerciements sincères pour avoir accepté d'être membre du jury de cette thèse.

Que Monsieur MOUDOUD Mustapha, Maître de conférences à l'Université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou, trouve ici le témoignage de mes sincères remerciements pour avoir accepté d'examiner ce travail.

Je remercie toutes les personnes qui m'ont apporté leur soutien, enseignants, ingénieurs, techniciens, secrétaires et étudiants de l'université de Tizi-Ouzou et de l'université de Bouira.

Je remercie enfin tous mes proches.

## SOMMAIRE

|                                   |          |
|-----------------------------------|----------|
| <b>Introduction générale.....</b> | <b>1</b> |
|-----------------------------------|----------|

### **Chapitre I. Généralités sur les polymères et mécanismes de dégradation superficielle**

|                                                                                             |    |
|---------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| I.1.Introduction.....                                                                       | 4  |
| I.2. Rappel sur les isolants solides.....                                                   | 4  |
| a- Isolants solides naturels.....                                                           | 4  |
| b- Isolants solides fabriqués .....                                                         | 5  |
| c- Polarisation des isolants solides .....                                                  | 5  |
| I.3. Les polymères .....                                                                    | 6  |
| I.3.1. Structure des polymères .....                                                        | 6  |
| a- Polymères linéaires .....                                                                | 6  |
| b- Polymères ramifiés .....                                                                 | 7  |
| c- Polymères réticulés .....                                                                | 8  |
| d- Polymères cristallisés et polymères amorphes.....                                        | 8  |
| I.3.2. Procédés de polymérisation .....                                                     | 9  |
| a- La polymérisation en chaîne .....                                                        | 9  |
| b- La polycondensation .....                                                                | 10 |
| I.4. Le polyméthacrylate de méthyle (PMMA) .....                                            | 10 |
| I.4. 1. Monomères constitutifs.....                                                         | 10 |
| I.4.2. Les différents types de PMMA .....                                                   | 12 |
| a- PMMA choc .....                                                                          | 12 |
| b-PMMA chaleur.....                                                                         | 12 |
| I.4.3. Production du polyméthacrylate de méthyle.....                                       | 12 |
| I.4.4. Propriétés du polyméthacrylate de méthyle .....                                      | 12 |
| a- Propriétés physiques.....                                                                | 12 |
| b- Propriétés mécaniques .....                                                              | 13 |
| c- Propriétés chimiques .....                                                               | 13 |
| d- Propriétés électriques .....                                                             | 13 |
| e- Propriétés thermiques.....                                                               | 14 |
| f- Autres propriétés.....                                                                   | 14 |
| I.4.5. Les avantages et les inconvénients du PMMA .....                                     | 15 |
| a- Avantages .....                                                                          | 15 |
| b- Inconvénients .....                                                                      | 15 |
| I.4.6. Recyclage .....                                                                      | 15 |
| I. 5. La résine époxyde .....                                                               | 15 |
| I. 6. Mécanisme de dégradation et de transformation superficielle des solides isolants..... | 16 |
| I. 6.1. Définition du phénomène de vieillissement.....                                      | 16 |
| I. 6.2. Différents types de vieillissement.....                                             | 16 |
| I. 6.2.1. Vieillissement thermique .....                                                    | 16 |

|                                                                          |    |
|--------------------------------------------------------------------------|----|
| I. 6.2.2. . Vieillissement chimique.....                                 | 17 |
| a- Génération de l’ozone .....                                           | 18 |
| b- Hydrolyse .....                                                       | 18 |
| I. 6.2.3. Vieillissement physique .....                                  | 19 |
| I. 6.2.4. Vieillissement climatique.....                                 | 19 |
| I. 6.2.5. Vieillissement électrique.....                                 | 20 |
| a- Influence de la pollution.....                                        | 20 |
| b- Influence de la pression.....                                         | 21 |
| c- Influence de la polarité sur la nature d’une décharge électrique..... | 21 |
| I. 7. Conclusion .....                                                   | 22 |

## **Chapitre II. Espèces générées par une décharge électrique**

|                                                                        |    |
|------------------------------------------------------------------------|----|
| II.1. Définition d’une décharge électrique.....                        | 23 |
| II.2. Origine de la décharge .....                                     | 23 |
| II.3. Généralités sur les décharges dans les gaz .....                 | 24 |
| II.3.1. Excitation atomique .....                                      | 25 |
| II.3.2. Ionisation par collision électronique.....                     | 26 |
| II.3.3. Recombinaison radiative .....                                  | 26 |
| II.3.4. Recombinaison par ions.....                                    | 26 |
| II.3.5. Recombinaison ion <sup>+</sup> - électron.....                 | 26 |
| II.3.6. Attachement.....                                               | 26 |
| II.3.7. Détachement .....                                              | 27 |
| II.3.8. Mouvement des charges dans un champ électrique (mobilité)..... | 27 |
| II.4. Décharges partielles.....                                        | 27 |
| II.4.1. Mécanisme de la décharge partielle.....                        | 27 |
| II.4.2. Modèle mathématique .....                                      | 28 |
| II.4.3. Développement de la décharge partielle.....                    | 28 |
| II.4.3.1.Effet couronne .....                                          | 28 |
| II.4.3.2. Effet d’un arc électrique .....                              | 30 |
| II.5. Etude des espèces générées par une décharge électrique .....     | 33 |
| II.5.1. Etude du mouvement des électrons .....                         | 34 |
| II.5.2. Etude du mouvement vibratoire .....                            | 35 |
| II.5. 3. Etude du comportement physicochimique des particules.....     | 36 |
| II.6. Conclusion .....                                                 | 40 |

## **Chapitre III. Dispositif expérimental et modes opératoires**

|                                                                                           |    |
|-------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| III.1. Introduction .....                                                                 | 41 |
| III.2. Choix du système d’électrodes utilisé pour générer la décharge couronne .....      | 41 |
| III.3. Dispositifs expérimentaux.....                                                     | 43 |
| III.3. Dispositif expérimental de traitement des échantillons à la décharge couronne..... | 43 |
| a. Source de tension (Transformateur d’essai) .....                                       | 44 |

|                                                                                      |    |
|--------------------------------------------------------------------------------------|----|
| III.3.2. Dispositif expérimental de mesure des courants d'influence et de fuite..... | 45 |
| III.3.3. Dispositif expérimental de mesure de résistivité.....                       | 47 |
| III.3.4. Dispositif expérimental de mesure des courants de décharge.....             | 47 |
| III. 4. Préparation des échantillons.....                                            | 48 |
| III.4.1. Polyméthacrylate de méthyle (PMMA) et copolymère SAN/PMMA .....             | 48 |
| III.4.2. Résine époxyde .....                                                        | 49 |
| III.5. Appareils d'analyses .....                                                    | 49 |
| III.5.1. Microscope électronique à balayage .....                                    | 49 |
| III.5.2. Dispositif d'analyse aux rayons infrarouges .....                           | 52 |
| III.5.3. Dispositif d'analyse par la spectroscopie d'impédance (RLC mètre).....      | 53 |
| III.6. Conclusion.....                                                               | 54 |

#### **Chapitre IV. Applications : Etude du comportement physicochimique du PMMA soumis à une décharge couronne**

|                                                                                                    |    |
|----------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| IV.1. Observation visuelle des échantillons .....                                                  | 55 |
| IV.2. Résultats d'analyses .....                                                                   | 55 |
| IV.2.1. Etude morphologique et structurale de surface.....                                         | 55 |
| IV.2.1.1. Analyse au microscope électronique à balayage (MEB) .....                                | 55 |
| IV.2.1.1.1. Influence du temps de vieillissement sur la longueur finale des arborescences .....    | 56 |
| IV.2.1.1.2. Influence de l'épaisseur de la couche d'air sur la longueur finale des arborescences . | 57 |
| IV.2.1.2. Analyse par diffraction des rayons X.....                                                | 58 |
| IV.2.1.3. Analyse au microscope à force atomique .....                                             | 60 |
| IV.2.1.4. Analyse par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier FTIR .....                 | 61 |
| IV.2.1.4.1. Spectre d'absorption .....                                                             | 61 |
| IV.3. Mesure de résistivité .....                                                                  | 63 |
| IV.4. Phénomène de charges du PMMA soumis à une irradiation électronique .....                     | 64 |
| IV.5. Comportement du PMMA dopé avec du SAN .....                                                  | 66 |
| IV.5.1. Etude comparative PMMA/copolymère .....                                                    | 66 |
| IV.5.2. Effet de la décharge couronne sur le comportement du copolymère .....                      | 67 |
| IV.6. Discussion des résultats .....                                                               | 69 |
| IV.6.1. Evolution morphologique avec le vieillissement électrique de la surface du PMMA .....      | 69 |
| IV.6.2. Transformation chimique .....                                                              | 70 |
| IV.6.3. Influence du vieillissement électrique sur les phénomènes de charges .....                 | 71 |
| IV.6.4. Influence du dopage sur les propriétés du PMMA .....                                       | 73 |
| IV.7. Conclusion .....                                                                             | 73 |

#### **Chapitre V. Influence des caractéristiques de l'interface air-solide sur les propriétés diélectriques et le courant de décharge**

|                                       |    |
|---------------------------------------|----|
| V.1. Introduction .....               | 75 |
| V. 2. Spectroscopie diélectrique..... | 75 |

|                                                                                                  |           |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| V.2.1. Mesures et analyses .....                                                                 | 75        |
| V.2.1.1. Permittivité relative .....                                                             | 76        |
| V.2.1.2. Facteur de pertes diélectriques .....                                                   | 77        |
| V.2.1.3. Facteur de dissipation .....                                                            | 79        |
| V.3. Courant de décharge .....                                                                   | 80        |
| V.3.1. Résultats expérimentaux et discussion .....                                               | 80        |
| V.3.1.1. Forme des impulsions du courant de décharge .....                                       | 80        |
| V.3.1.2. Influence du niveau de la tension sur le courant maximum de décharge .....              | 81        |
| V.3.1.3. Influence de l'épaisseur de l'intervalle d'air sur le courant maximum de décharge ..... | 83        |
| V.3.1.4. Influence de la forme des électrodes sur le courant maximum de décharge .....           | 85        |
| V.4. Charge associée à l'impulsion maximum de courant .....                                      | 86        |
| V.4.1. Evaluation de la charge associée à une impulsion de courant .....                         | 86        |
| V.5. Conclusion .....                                                                            | 88        |
| <b>Conclusion générale .....</b>                                                                 | <b>89</b> |
| <b>Bibliographie .....</b>                                                                       | <b>91</b> |

# **INTRODUCTION GENERALE**

En dehors des processus de corrosion chimique ou électrochimique, les problèmes que connaissent les isolants utilisés en haute tension, sont dus principalement à l'apparition de décharges superficielles qui, selon les conditions électriques qui prévalent, érodent peu à peu le matériau isolant ou, au contraire, s'allongent brutalement pour conduire au contournement de ce dernier qui, dès lors, ne remplit plus son rôle [1]. Un diélectrique chargé en surface, présente un potentiel surfacique local et au cours du temps, la valeur de ce potentiel décroît et permet au matériau d'évacuer, par plusieurs mécanismes, la charge déposée. Le champ appliqué par les charges déposées en surface crée un phénomène de polarisation dipolaire, par orientation des dipôles déjà existants ou par une polarisation inter faciale par la migration des charges vers les interfaces. Ceci provoque l'apparition d'une charge en surface, de signe opposé par le phénomène d'influence totale. La charge déposée en surface peut être neutralisée par les porteurs libres provenant de l'atmosphère environnante du matériau [2, 3]. En effet, un matériau isolant soumis à une contrainte électrique peut voir ses propriétés changer avec le temps, sous l'influence des contraintes de fonctionnement (champ électrique, température, contraintes mécaniques, irradiations, ...etc.). La durée de vie de l'isolant dépend de l'intensité et du temps d'application de la contrainte électrique subie par celui-ci ainsi que de la configuration des contacts électriques [4-6]. Il est donc important d'évaluer le comportement des isolants (les isolants solides en particuliers) vis-à-vis de la décharge électrique.

Du point de vue macroscopique, les phénomènes liés au vieillissement sont maintenant bien connus : la rupture diélectrique de l'isolant se conclut par la propagation de canaux conducteurs microscopiques. Cette phase est généralement précédée par une période de croissance de défauts à l'échelle microscopique telle que la formation ou l'extension de cavités microscopiques [5] qui peuvent être dues à des décharges électriques. En effet, même si les diélectriques sont constitués d'atomes pour lesquels les forces de liaison, dues à la structure du milieu, rendent difficile le déplacement des porteurs de charges, sous l'effet du champ électrique suffisamment intense, l'énergie ionique sera suffisante pour que les électrons puissent passer de la bande de valence à la bande de conduction [7]. Ce type de décharge est dû aux espèces excitées (ions, radicaux, molécules excitées par vibration), créées par collisions avec les électrons dont l'énergie est générée par un champ électrique. Un modèle réactionnel complet comprenant toutes les réactions et les espèces est donc indispensable pour aborder ce type de décharge. Il permet de mettre en évidence les processus chimiques les plus importants dans la décharge et de comprendre la redistribution de l'énergie de la décharge entre les différents modes d'excitation.

Les polymères qui sont les isolants les plus utilisés de nos jours sont sujets à de nombreuses études, notamment sous contraintes électrique, thermique et environnementale. Une décharge qui se produit à leur surface constitue un facteur de vieillissement responsable de la destruction du polymère [8] dont les processus physicochimiques ne sont pas encore bien connus [9, 10]. La décharge électrique, en particulier la décharge couronne, constitue donc une vraie menace pour la durée de vie de ces polymères. Elle conduit à la dégradation du



matériau qui se traduit par plusieurs phénomènes tels que [1-3] le changement de couleur, le claquage, l'érosion, le développement d'arcs électriques, la diminution de la densité et de l'épaisseur du solide isolant ainsi que les pertes diélectriques. Ainsi, en vieillissant sous décharge couronne pendant un certain temps, le polymère voit ses propriétés mécaniques et électriques se dégrader, ce qui peut conduire à une dégradation apparente des performances diélectriques telles que la permittivité et la conductivité électrique [11]. Ces changements sont susceptibles de modifier les propriétés macroscopiques du polymère et donc sont responsables de la détérioration de ses performances et la limitation de sa durée de vie utile.

Parmi les diélectriques les plus utilisés dans l'industrie et qui se prêtent le mieux aux diverses investigations nous citons le polyméthacrylate de méthyle appelé PMMA. C'est un polymère d'une grande importance dans l'ingénierie électrique en raison de ses excellentes propriétés diélectriques et mécaniques, son faible coût et sa haute transparence [12-16]. A l'instar des autres polymères, le PMMA présente, par rapport aux isolants classiques, l'avantage d'avoir des propriétés mécaniques meilleures et une mouillabilité plus faible. Il présente également la particularité d'être plus léger et une mise en œuvre plus facile [14]. Cependant, et comme tous les autres polymères, le PMMA présente l'inconvénient d'être plus vulnérables à l'action des décharges de surface qui provoquent sa dégradation [17]. Il est donc important d'étudier son comportement quand il est soumis à une décharge électrique.

Afin d'améliorer les propriétés des diélectriques utilisés en haute tension, plusieurs travaux ont présenté l'intérêt de l'utilisation des matériaux composites étant donné que le dopage du polymère améliore ses propriétés. En effet une étude faite sur du polystyrène (PS) mélangé au PMMA a donné des résultats satisfaisants étant donné que le PS n'a pas influencé la structure du PMMA en se dispersant sous formes circulaires de quelques  $\mu\text{m}$  le long de la couche de ce dernier [18].

L'objectif de notre étude est de dégager les résultats les plus marquants relatifs aux effets de la décharge couronne sur une isolation solide. Une étude systématique est réalisée sur le PMMA vu la simplicité et la clarté de sa formule chimique, ceci permet une caractérisation physico-chimique plus facile de ce dernier. L'étude est complétée avec le styrène acrylonitrile (SAN) et la résine époxy ainsi que le copolymère constitué d'un mélange de PMMA et du SAN.

Ce rapport est structuré en cinq chapitres :

Le premier chapitre est consacré à une synthèse bibliographique qui comporte des généralités sur les polymères et les mécanismes de leur dégradation superficielle.

Le deuxième chapitre est consacré à l'étude des espèces générées par une décharge électrique.

Le dispositif expérimental et les modes opératoires utilisés dans le cadre de ce travail sont présentés dans le troisième chapitre.

Le quatrième chapitre est dédié à l'étude du comportement physicochimique du PMMA soumis à une décharge couronne.

Le chapitre cinq concerne l'étude de l'influence des caractéristiques de l'interface air-solide sur les propriétés diélectriques et le courant de décharge.

Nous terminerons par une conclusion générale où sont mis en évidence les principaux résultats de notre travail et nous y donnerons également certaines perspectives ouvertes par ce travail.

**CHAPITRE I**

**GENERALITES SUR LES  
POLYMERES ET MECANISMES  
DE DEGRADATION  
SUPERFICIELLE**

## I.1. Introduction

Les matériaux polymères sont largement utilisés vu leurs excellentes propriétés physicochimiques. Ils jouent un rôle très important dans le domaine de l'isolation électrique [19]. Leur qualité d'isolant est étroitement liée à leur structure moléculaire, à partir de laquelle il est possible d'imaginer la morphologie et les propriétés du matériau. Actuellement, il existe plusieurs centaines de polymères différents et certains trouvent une large utilisation en électrotechnique.

L'objectif principal de ce chapitre est de donner un aperçu sur les principaux polymères, leur classification et leur structure. Nous parlerons aussi des différents mécanismes de vieillissement.

## I.2. Rappel sur les isolants solides

Un isolant solide constitue un élément de base pour une isolation en haute tension. Contrairement aux autres isolants, il est connu par sa particularité d'assurer la rigidité mécanique des matériels électriques [20,21]. Du point de vue électrique, il est caractérisé par la permittivité relative, le facteur de pertes diélectriques en tension alternative, la rigidité diélectrique  $E_r$  (V/m) et la résistance en tension continue.

Un isolant électrique est, par définition, un matériau qui ne conduit pas l'électricité, il a pour fonction d'empêcher tout contact entre des pièces métalliques portées à des potentiels différents. Les mots isolant et diélectrique risquent d'être confondus si ce n'est la polarisabilité qui caractérise les matériaux diélectriques par opposition aux isolants. En effet, au niveau des matériaux diélectriques, on note la présence de dipôles électrostatiques (diélectrique polaire) ou leur formation sous l'effet d'un champ électrique. Les diélectriques ne contiennent pas de charges libres dans leurs structures, à moins qu'ils soient soumis à l'action des facteurs ionisants externes provoquant la perte de leurs propriétés diélectriques. Les charges de signes différents dans les atomes et les particules constituant les diélectriques, sont liées. Lorsque ces charges sont soumises aux forces induites par le champ électrique, certaines liaisons ne se rompent pas seules et de légers déplacements élastiques apparaissent. Toutes les charges positives se déplacent dans la direction conforme à celle du champ et les charges négatives dans la direction opposée, ce qui crée une polarisation du diélectrique. La polarisation et la conductivité, ou toute mobilité de porteurs de charge, induisent des pertes diélectriques. En effet, les phénomènes qui se produisent dans les diélectriques soumis à un champ électrique dépendent de la fréquence du champ, de la température et de la structure du diélectrique.

### a. Isolants solides naturels

Les premiers isolants solides utilisés ont été ramassés dans la nature : bois sec, soufre, résines naturelles, ambre, caoutchouc, ...etc.

### **b. Isolants solides fabriqués**

A partir du 18<sup>e</sup> siècle, les nombreuses applications de l'électricité ont poussé les utilisateurs à fabriquer des isolants synthétiques (verre, porcelaine, papier et de nombreux polymères), inventés et développés par les chimistes. Possédant des propriétés thermiques, électriques et mécaniques bien supérieures à celles des isolants naturels, les isolants synthétiques ont grandement modifié la fabrication des fils, des câbles et des appareils électriques de toutes sortes [21].

### **c. Polarisation des isolants solides**

Dans un diélectrique, la polarisation est due à des mécanismes de répartition de charges sous l'influence du champ électrique. En présence d'un champ électrique alternatif, la polarisation ne suit pas le champ d'une façon instantanée [20].

On distingue plusieurs types de polarisation : électronique, ionique, par orientation et interfaciale; celles-ci peuvent coexister ou apparaître séparément. La polarisation totale est la somme des différents types de polarisation [20, 22].

- La polarisation électronique est présente dans tous les diélectriques, sans exception. Quand un champ électrique est appliqué, le nuage électronique de chaque atome est déplacé légèrement par rapport au noyau, donnant un dipôle induit. Cette polarisation résulte donc des déplacements des orbites électroniques externes par rapport au noyau de l'atome et elle s'établit en un temps de l'ordre de  $10^{-15}$ s. La déformation de l'orbite qui l'accompagne est élastique, c'est-à-dire que le travail nécessaire à son apparition n'est pas converti en chaleur mais stocké dans le champ électrique. La polarisation élastique électronique ainsi que les dipôles induits disparaissent quand le champ est supprimé.

- La polarisation ionique (ou atomique) résulte du déplacement des atomes liés par des liaisons ioniques. Quand des atomes différents sont présents dans une molécule ne possédant pas de moment dipolaire permanent, les électrons participant aux liaisons de covalence se déplacent préférentiellement vers l'atome le plus électronégatif, créant ainsi, sans contrainte extérieure, un moment de liaison (moment dipolaire induit). Si l'on superpose un champ électrique, les atomes se déplacent les uns par rapport aux autres, donnant naissance à une polarisation ionique qui met en jeu le déplacement d'atomes au sein de la molécule. On rencontre les liaisons ioniques dans la plupart des diélectriques solides non-organiques avec une structure cristalline. Vu l'inertie des ions relativement lourds, ce type de polarisation s'établit aux environs de  $10^{-13}$ s, donc plus lentement que la polarisation électronique. La polarisation ionique se présente comme la polarisation électronique, elle crée des dipôles induits, elle ne provoque pas de pertes d'énergie et disparaît avec la suppression du champ appliqué, c'est donc une polarisation élastique.

- La polarisation dipolaire (ou d'orientation) consiste en l'orientation, sous l'action du champ électrique, des molécules polaires, c'est à dire celles qui possèdent un moment dipolaire permanent. La structure de ces molécules est asymétrique : le centre de gravité résultant de toutes les charges négatives d'une telle molécule ne coïncide pas avec celui de toutes les charges positives. C'est le cas du polychlorure de vinyle (PVC), qui a un fort moment dipolaire permanent.

Quand un champ électrique constant est appliqué, la polarisation d'orientation n'atteint pas immédiatement sa valeur maximale. De même, à la coupure du champ, la polarisation décroît au bout d'un temps  $t$  déterminé. La polarisation s'exprime en  $C/m^2$ , elle est généralement donnée par l'équation suivante :

$$P = P_0 \exp(-t/\tau) \quad (I.1)$$

Avec  $P_0$  : Polarisation induite par le champ électrique ;

$\tau$  : Temps de relaxation.

La polarisation d'orientation joue un rôle important dans les matériaux macromoléculaires, pour lesquels elle confère une valeur relativement élevée de la permittivité relative  $\epsilon_r$  et une valeur importante du facteur de pertes diélectriques ( $10^{-3}$  à  $10^{-2}$ ) qui varie rapidement avec la température.

### I.3. Les polymères

Un polymère est une macromolécule, organique ou inorganique, constituée de l'enchaînement répété de monomères identiques, reliés les uns aux autres par des liaisons covalentes. Ces monomères peuvent être arrangés suivant un enchaînement unidimensionnel constituant des chaînes linéaires (polymères linéaires) ou reliés entre eux pour former un réseau tridimensionnel (polymères réticulés) [20]. Les macromolécules sont connectées les unes aux autres par des liaisons faibles de type Van der Waals [23].

Le nombre moyen de ces unités de base (monomères) dans les molécules finales (polymères) représente le degré de polymérisation. Si ce degré est élevé, on parle de hauts polymères par contre s'il est faible, le composé est une oligomère. Ce degré de polymérisation peut atteindre plusieurs centaines de milliers. La dimension d'un monomère est de l'ordre de 0.2 à 1 nm alors que celle du polymère peut atteindre quelques milliers de nm [24].

#### I.3.1. Structure des polymères

La structure et les propriétés finales du matériau dépendent de la nature des atomes constitutifs, de l'agencement des unités monomères et de l'organisation des chaînes dans l'espace [23]. Les polymères peuvent présenter donc, des architectures extrêmement variables. Ils peuvent être linéaires, ramifiés ou réticulés. Le plus souvent, ils sont amorphes, mais ils peuvent être cristallins ou semi-cristallins.

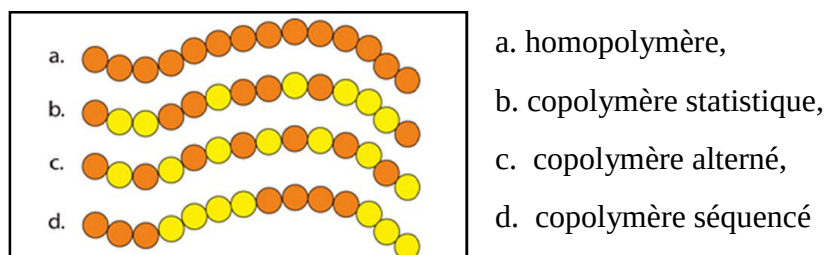
##### a. Polymères linéaires

Les polymères linéaires sont constitués de grandes chaînes de monomères reliés entre eux par

des liaisons covalentes (figure I.1). Ces macromolécules sont liées entre elles par des liaisons secondaires qui assurent la stabilité du polymère. Lorsque ces liaisons existent, le matériau devient rigide et présente un comportement de solide.

Si la température s'élève, l'agitation moléculaire qui en résulte induit la rupture progressive de ces liaisons secondaires. Le matériau pourra donc s'écouler sous son propre poids et présente alors le comportement d'un liquide visqueux. La température à laquelle se produit cette évolution s'appelle température de transition vitreuse.

La transition vitreuse correspond à l'apparition de mouvements de longs segments de chaînes et marque le passage de l'état vitreux à l'état caoutchouteux.

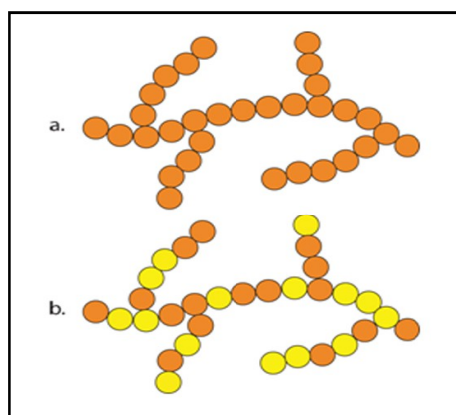


**Fig.I.1.** polymères linéaires [25]

Les propriétés mécaniques des copolymères varient en fonction du type et de la disposition des monomères. Les rotations de la chaîne sont facilitées ou au contraire rendues plus difficiles en fonction de la nature, de la disposition et de l'encombrement de chacun des monomères.

### **b. Polymères ramifiés**

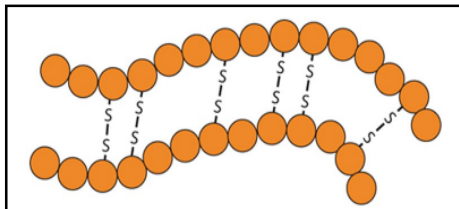
Des chaînes homopolymériques ou copolymériques peuvent se greffer sur d'autres chaînes au cours de la polymérisation (figure I.2). Au-dessus de la température de transition vitreuse, ces matériaux présenteront un comportement visqueux plus marqué que les polymères linéaires.



**Fig.I.2.** Homopolymère ramifié (a) et copolymère ramifié (b) [25]

### c. Polymères réticulés

La réticulation correspond à la formation de liaisons chimiques suivant les différentes directions de l'espace au cours d'une polymérisation, d'une polycondensation ou d'une polyaddition, et qui conduit à la formation d'un réseau (figure I.3).



**Fig. I.3.** Polymère réticulé avec ponts disulfures reliant deux chaînes [25]

### d. Polymères cristallisés et polymères amorphes

- **Structure cristalline**

La structure cristalline est caractérisée par une distribution périodique régulière de particules constituant le matériau (ordre à longue distance, réseau cristallin).

- **Structure amorphe**

La structure amorphe est une structure dense et peu ordonnée (figure I.4). Elle est de type pelote statique dans laquelle on ne distingue aucun ordre à grande échelle. Cette structure est rencontrée dans certaines céramiques ainsi que dans de nombreux polymères organiques tels que le polyméthacrylate de méthyle (PMMA), le styrène acrylonitrile (SAN) et le polystyrène (PS) [24].

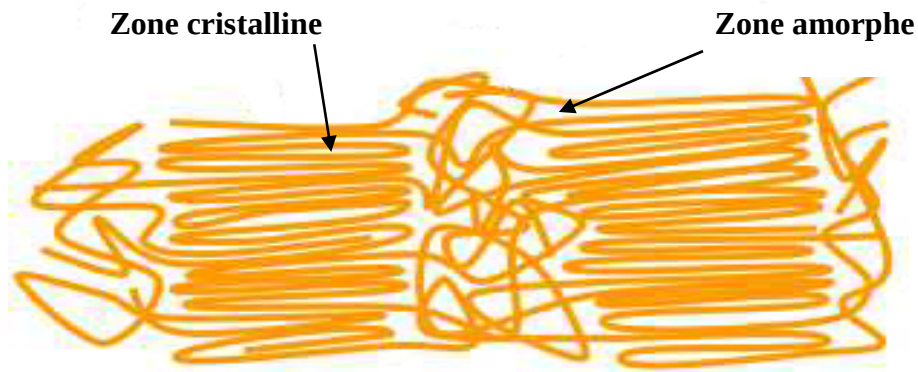


**Fig.I.4.** Structure moléculaire des polymères amorphes [26]

- **Structure semi- cristalline**

La figure I.5 nous donne le schéma d'une structure semi-cristalline. Cette structure est une structure complexe, qui est caractérisée par la coexistence de phases amorphes et cristallines en proportion variable (présence de cristallinité). Elle est rencontrée dans de nombreux polymères organiques tels que le Polypropylène (PP) et le polyéthylène (PE) [26].

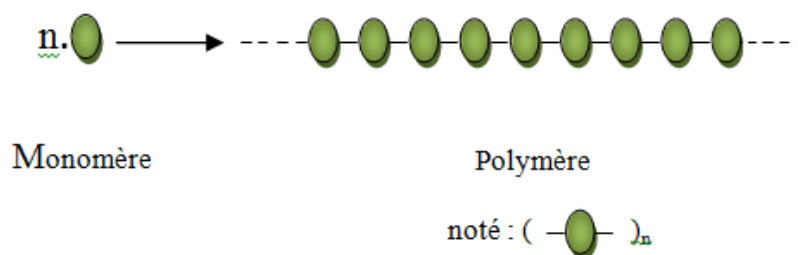




**Fig. I.5.** Structure moléculaire des polymères semi-cristallins [26]

### I.3.2. Procédés de polymérisation

On entend par polymérisation le procédé de transformation d'un monomère en un polymère, et on appelle copolymérisation, celui de transformation d'un mélange de deux (ou plus) monomères en un copolymère. Ainsi, le fait d'unir des monomères pour obtenir des polymères (ou macromolécules) s'appelle la polymérisation (figure I.6).



**Fig. I.6.** Modèle schématique de la synthèse d'un polymère.

Le nombre de monomères formant le polymère représente le degré de polymérisation. Il peut atteindre plusieurs centaines de milliers.

La masse molaire de la macromolécule  $M$  est en rapport avec le degré de polymérisation  $n$  qui représente le nombre d'unités répétées dans la macromolécule.

$$M = nM_0 \quad (I.2)$$

Où  $M_0$  est la masse molaire de l'unité de répétition.

Il existe plusieurs types de polymérisation. Nous citerons ici la polymérisation en chaîne et la polycondensation.

#### a- La polymérisation en chaîne

Ce genre de polymérisation nécessite la présence d'amorceurs (radicalaires et/ou ioniques) qui vont activer les monomères pour les rendre réactifs les uns vis-à-vis des autres et permettre ainsi les réactions en chaîne, menant à la formation de la chaîne macromoléculaire [27]. Les monomères s'associent sans réaction d'élimination simultanée. La polymérisation en chaîne est très utilisée dans l'élaboration de polymères tels que le polyéthylène, le polypropylène, le polystyrène, l'alcool polyvinylique et le polytétrafluoroéthylène (Téflon).

Comme toute réaction en chaîne, cette polymérisation comporte les étapes suivantes :

- l'amorçage : formation des centres actifs à partir du monomère.
- la propagation : croissance des chaînes de polymère par additions successives.
- la terminaison : destruction du centre actif et interruption de la croissance des chaînes.

#### b- La polycondensation

La polycondensation consiste en la formation des chaînes macromoléculaires à partir de réactions successives entre les chaînes en croissance, présentant à leur extrémité au moins un groupement réactionnel et les monomères réactifs vis-à-vis de ce groupement [27].

Au cours de la polycondensation, les monomères s'associent avec élimination simultanée d'atomes ou de groupes d'atomes. Les polyamides, les polyesters et certains polyuréthanes sont des exemples typiques de polymères obtenus par polycondensation.

### I.4. Le polyméthacrylate de méthyle (PMMA)

Le polyméthacrylate de méthyle, appelé PMMA, connu sous le nom commercial d'Altuglas ou plexiglas, est un polymère thermoplastique rigide, cassant et à structure amorphe dont le monomère est le méthacrylate de méthyle (MAM). C'est un polymère d'une grande importance dans l'ingénierie [28, 14, 29]. La chaîne macromoléculaire du PMMA est linéaire, avec des groupements latéraux volumineux (figure I.7).

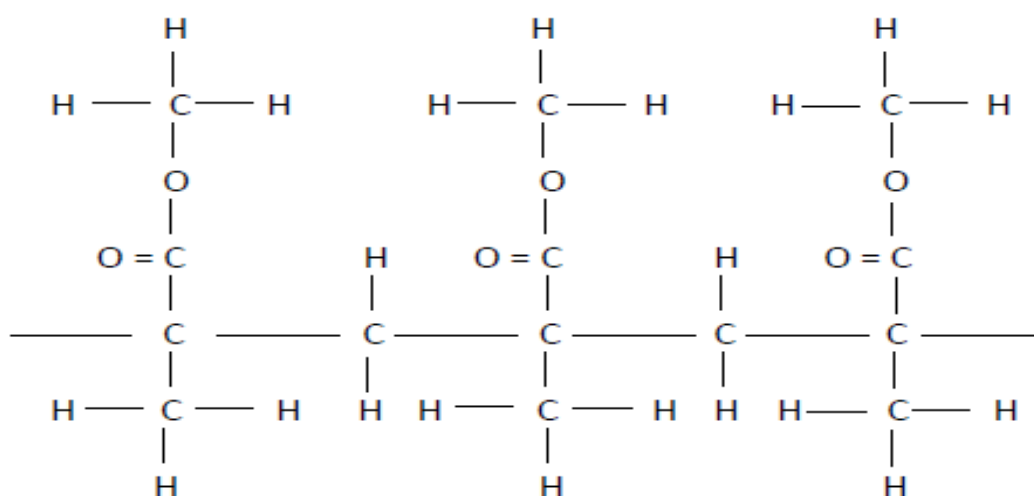
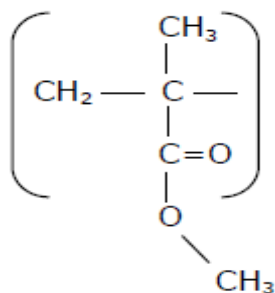


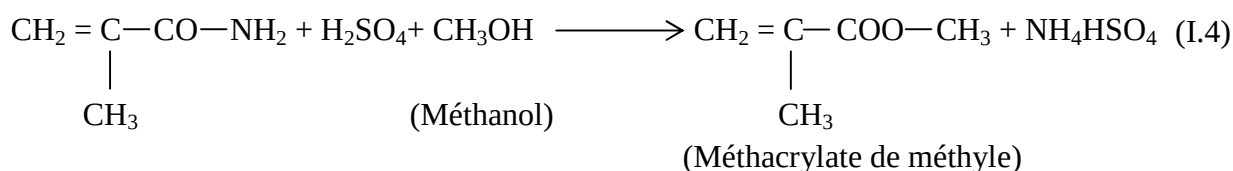
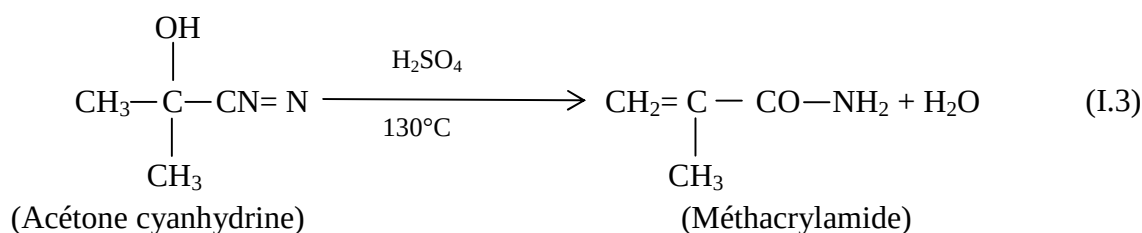
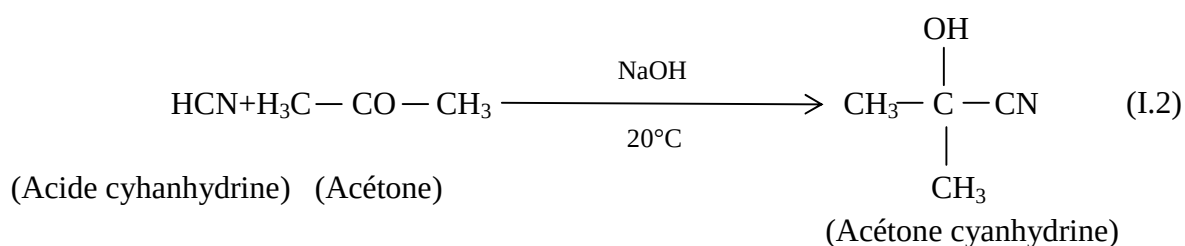
Fig. I.7. Chaîne macromoléculaire du PMMA.

#### I.4.1. Monomères constitutifs

Le méthacrylate de méthyle est le monomère principal des polymères méthacryliques. Sa formule brute est donnée par la figure I.8.

**Fig. I.8.** Méthacrylate de méthyle [24]

La figure I.9 nous donne les réactions décrivant le principe du procédé de production du méthacrylate de méthyle.

**Fig. I.9.** Principe du procédé de production du méthacrylate de méthyle [30].

### ➤ Comonomères classiques

L'acrylate de méthyle ou l'acrylate de l'éthyle est utilisé à faible teneur ( $\leq 1\%$ ) pour améliorer la stabilité du polyméthacrylate de méthyle. A forte teneur (1 % à 10 %), outre l'amélioration de la stabilité thermique, les comonomères permettent d'ajuster les conditions de transformation (injectabilité) et les propriétés mécaniques. L'acrylate de butyle peut également être utilisé dans certains cas. La polymérisation de ces comonomères conduit à des polymères méthacryliques, amorphes, transparents mais cassants.

### I.4.2. Les différents types de PMMA

#### a. PMMA choc

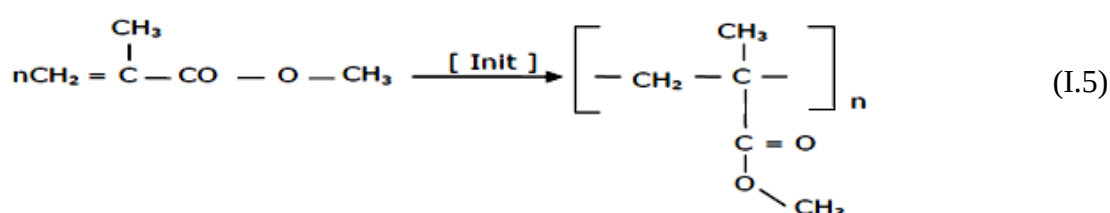
Pour renforcer les propriétés choc du PMMA tout en maintenant sa transparence, on ajoute un élastomère à base d'acrylate de butyle préparé par polymérisation en émulsion, dont l'indice de réfraction est proche de celui du PMMA.

#### b. PMMA chaleur

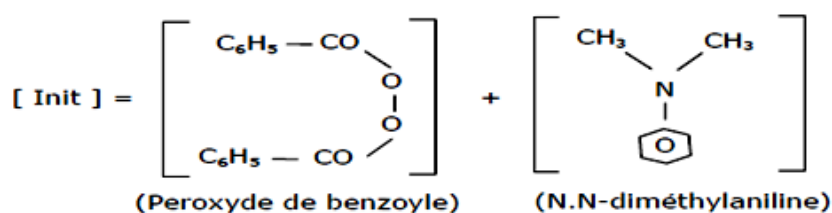
Afin d'améliorer la tenue thermique d'une pièce finie, on utilise quelques comonomères résistant à la chaleur tels que le maléimide de cyclohexyle, l'anhydride maléique ou l'acide méthacrylique.

### I.4.3. Production du polyméthacrylate de méthyle

Le méthacrylate de méthyle sert essentiellement à produire le polyméthacrylate de méthyle (PMMA). La réaction de polymérisation est une polymérisation radicalaire amorcée par des radicaux libres, formés dans le milieu à partir de composés tels que le peroxyde de benzoyle dont la décomposition peut être accélérée par la présence de certains réducteurs, tels que le N et N- diméthylaniline comme le montre la réaction (I.5) [30].



(Polyméthacrylate de méthyle)



### I.4.4. Propriétés du polyméthacrylate de méthyle

#### a. Propriétés physiques

- Le PMMA est un polymère amorphe possédant d'excellentes propriétés optiques et une transparence remarquable (92 % de transmission lumineuse). Sa longueur d'onde dans le visible est de 380 à 780 nm [31, 32].
- Les plaques extrudées et donc non isotropes présentent un indice de réfraction différent suivant l'orientation de la lumière.

- Le PMMA peut aisément se colorer y compris dans des teintes fumées pour vitrages [33].
- Son indice de réfraction est de 1,491 (pour  $\lambda = 587,6$  nm hélium) ce qui en fait un matériau très utilisé dans le domaine optique. La température de ramollissement du PMMA est de 130 à 140 °C [31].
- Le PMMA est hygroscopique et dans des conditions extrêmes, l'eau absorbée agira comme un plastifiant et modifiera les propriétés du matériau [31].

### **b. Propriétés mécaniques**

Le PMMA est un polymère amorphe dont la température de transition vitreuse est de 110 à 135 °C. A température ambiante, le PMMA est dur, rigide et cassant avec un faible allongement [31]. Son module d'élasticité en traction est de 7.7 à 13 GPa.

- Dureté : le PMMA se raye et les entretiens répétés peuvent altérer la qualité de surface mais inversement il se polie très facilement [33].
  - Il présente une excellente tenue aux ultra-violets d'où une bonne résistance au vieillissement [34].
  - Le PMMA est hygroscopique et dans des conditions extrêmes, l'eau absorbée agira comme un plastifiant et modifiera les propriétés du matériau.
  - Fluage : assez limité. Au-delà de la contrainte critique, le PMMA est sujet au fendillement. Ce phénomène est même accentué en présence d'agent agressif (alcools, essences...etc.) [32, 33].
  - Choc : la résistance au choc du PMMA est relativement faible et le polymère est cassant. Celle-ci peut être améliorée par l'adjonction d'agent antichoc.
- Le polyméthacrylate de méthyle présente les caractéristiques mécaniques suivantes :
- Contrainte maximale à la traction : 65 à 70 MPa.
  - Allongement à la rupture : 5 à 6%.
  - Contrainte maximale à la flexion : 97 à 103 MPa.
  - Module d'élasticité en flexion : 2900 à 3300 MPa.
  - Contrainte maximale de compression : 97 à 117 MPa.

### **c. Propriétés chimiques [32, 33]**

- Le PMMA est insipide et sans odeur et peut, dans certains cas, être reconnu de qualité alimentaire.
- Jusqu'à 60°C le PMMA résiste assez bien aux acides organiques et minéraux dilués ainsi qu'aux solutions alcalines diluées mais il est attaqué par les produits courants et quelques agents agressifs (acétone, benzène, carburant d'avion...etc.).

### **d. Propriétés électriques**

- Les propriétés électriques du PMMA peuvent être nettement affectées par la reprise d'humidité.

- Sa résistance à l'arc est excellente.
- Il est électrostatique, ce qui peut nuire à sa présentation (attraction de poussière) ; on peut pallier cet inconvénient en utilisant des produits antistatiques.
- Les caractéristiques électriques du PMMA sont représentées dans le tableau I.1.

**Tableau I.1.** Caractéristiques électriques du PMMA [24]

|                                    |             |                                              |
|------------------------------------|-------------|----------------------------------------------|
| Permittivité relative $\epsilon_r$ | 50 ou 60 Hz | 3.0 à 4.0                                    |
|                                    | 1 kHz       | 3.0 à 3.5                                    |
|                                    | 1 MHz       | 2.7 à 3.2                                    |
| Angle de pertes $\text{tg}\delta$  | 50 ou 60 Hz | $4 \cdot 10^{-2}$ à $5 \cdot 10^{-2}$        |
|                                    | 1 kHz       | $3 \cdot 10^{-2}$ à $5 \cdot 10^{-2}$        |
|                                    | 1 MHz       | $2 \cdot 10^{-2}$ à $3 \cdot 10^{-2}$        |
| Rigidité diélectrique              |             | 15 à 20 kV/mm                                |
| Résistivité superficielle          |             | $10^{15}$ à $10^{16} \Omega$                 |
| Résistivité transversale           |             | $10^{15}$ à $10^{16} \Omega \cdot \text{cm}$ |

### e. Propriétés thermiques

- Le PMMA est combustible et brûle lentement sans fumée excessive [32, 33].
- Son retrait au moulage est faible (0,4% à 0,7%) comme pour les polymères amorphes.
- Son coefficient de dilatation linéaire est très différent de celui des métaux et son élasticité est faible. Il sera déconseillé de prévoir des inserts métalliques dans une pièce en PMMA injecté.
- La température maximale d'utilisation est faible, <80 °C.
- Le coefficient de dilatation thermique est de  $0.7 \cdot 10^{-4}$  à  $0.8 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$  [32, 33].

### f. Autres propriétés

#### ▪ Propriétés dimensionnelles

- Même si l'absorption d'eau du PMMA reste lente et minime, une pièce peut présenter des variations dimensionnelles importantes.

#### ▪ Charges et renforts

Le PMMA n'est ni chargé (sauf antistatique et colorant) ni renforcé pour conserver sa transparence.

### ▪ Comportement vis-à-vis du feu

Les polyméthacryliques sont facilement combustibles, mais on peut leur ajouter des agents ignifugeants pour des applications dans le bâtiment notamment. Même s'ils sont combustibles, leur combustion se fait sans dégagement de gaz nocifs.

#### I.4.5. Les avantages et les inconvénients du PMMA

##### a. Avantages

- Transparence exceptionnelle [35].
- Bonne tenue aux rayons ultra-violets [35].
- Excellente stabilité dimensionnelle [36].
- Caractère polaire [36].
- Faible résistance thermique [36].
- Surface brillante.
- Thermoformage aisé.
- Possibilité de couler.
- Facile à coller.

##### b. Inconvénients

- Cassant, fragile, rayable.
- Tenue en température limitée.
- Résistance chimique moyenne.

#### I.4.6. Recyclage

Le PMMA peut être fondu puis remoulé, mais c'est surtout par dépolymérisation qu'on peut le recycler facilement par chauffage. Le PMMA redonne son monomère de départ : le MAM. Celui-ci peut alors être réutilisé pour une nouvelle polymérisation.

### I.5. La résine époxyde

Les résines époxydes sont des matériaux utilisés depuis plusieurs dizaines d'années en électrotechnique [37]. Elles sont largement employées dans la constitution des supports de circuits imprimés et l'isolation de certains transformateurs. Elles sont intégrées dans les dispositifs en moyenne et haute tension, dans lesquels elles assurent un double rôle de support mécanique et isolation électrique [38]. Les résines époxydes sont connues pour leurs caractéristiques mécaniques élevées, leur résistance à la température et aux produits chimiques [39], ainsi que le maintien des performances électriques initiales, même après exposition à l'humidité [40].

Ces résines sont fabriquées par polymérisation de monomères époxydes avec un agent de réticulation (appelé parfois durcisseur) qui peut être un anhydride d'acide, un phénol ou le plus souvent une amine. Leur première synthèse date des années 1950 et environ un million de tonnes d'époxydes sont produites chaque année dans le monde [5].

Les principales familles de polyépoxydes sont [5] :

- le diglycidyléther du bisphénol A (DGEBA) ; c'est la résine la plus ancienne et la plus utilisée (parfois mélangée à des résines plus performantes pour améliorer la souplesse ou la mise en œuvre).
- les diglycidyléther du bisphénol A et du tétrabromobisphénol A qui ont un comportement au feu amélioré par rapport au DGEBA.
- les Novolaques (EPN) présentant une meilleure tenue en température et une résistance chimique accrue.
- les époxydes cycloaliphatiques avec des propriétés mécaniques, des propriétés électriques et de résistance au vieillissement supérieures.

## **I.6. Mécanisme de dégradation et de transformation superficielle des solides isolants**

### **I.6.1. Définition du phénomène de vieillissement**

Le vieillissement est un abaissement irréversible des caractéristiques d'un système isolant, par application d'un champ inférieur au champ disruptif.

### **I.6.2. Différents types de vieillissement**

On distingue différents types de vieillissements : le vieillissement thermique, le vieillissement physique, le vieillissement chimique, le vieillissement climatique et le vieillissement électrique.

#### **I.6.2.1. vieillissement thermique**

On appelle vieillissement thermique l'effet de la chaleur sur les matériaux isolants. En effet, la température élevée constitue l'une des contraintes qui conduit à la dégradation et le vieillissement des matériaux [41]. La contrainte thermique a pour effet d'augmenter la conduction électrique du matériau [24]. Elle entraîne aussi la perte de sa masse, le changement de sa couleur et la modification de sa structure suite à des réactions chimiques telles que l'oxydation, l'hydrolyse et les ruptures de chaînes. Il est donc nécessaire de définir la température maximale admissible pour les divers matériaux, afin d'éviter à ces derniers de devenir inaptes à supporter les diverses contraintes électriques et mécaniques auxquelles ils sont soumis.

Dans le cas d'un arc électrique en interaction avec une surface isolante, la distribution de la température  $T(x,t)$  dans le solide sous l'arc est donnée par l'équation (I.6) [42]:

$$T = \frac{2q\sqrt{at}}{\lambda} \operatorname{ierfc} \frac{x}{2\sqrt{at}} \quad (\text{I.6})$$

$T$  : température [K] ;

$a = \frac{\lambda}{\gamma c}$  : Diffusivité thermique du solide [ $\text{m}^2/\text{s}$ ] ;

$\lambda$  : Conductivité thermique du solide [ $\text{W/mK}$ ] ;



$\gamma$  : Densité du solide isolant [ $\text{kg/m}^3$ ] ;

$c$  : Chaleur spécifique [ $\text{J}/(\text{kgK})$ ] ;

$t$  : Temps [s] ;

$x$  : Profondeur de pénétration de la décharge ;

$Q$  : Charge ;

$\text{erf}(x) = \frac{2}{\pi} \int_0^x e^{-t^2} dt$  =fonction d'erreur.

Lors d'un jaillissement d'étincelles, un choc thermique se produit à la surface de l'isolant engendrant ainsi un changement chimique dépendant de la température. La chaleur due à ces étincelles peut avoir comme résultat la transformation des molécules d'un matériau se trouvant dans un état solide en des molécules d'un solide dans un état liquide. Cette tendance est probablement due au phénomène de scission qui peut se produire même pour une chaleur énergétique faible.

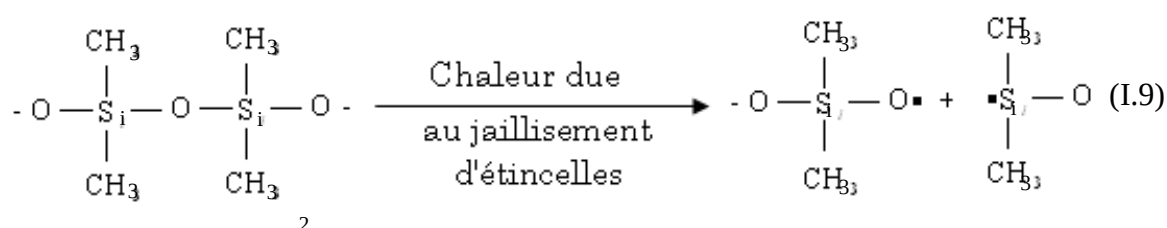
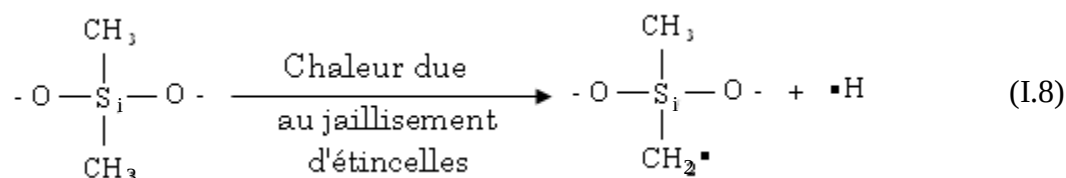
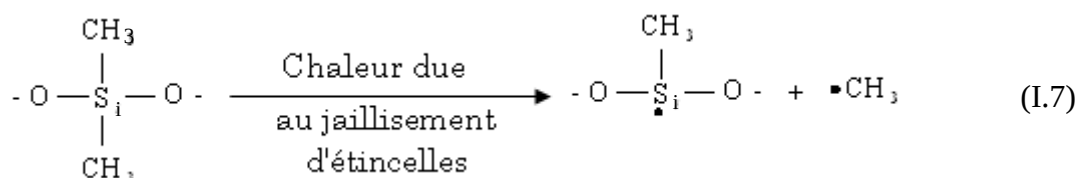
Il est à noter qu'une décharge couronne constitue une véritable source de chaleur qui induit la destruction des liaisons dans les polymères. Par ailleurs, chaque composant possède sa température de transformation. Les groupes des méthyles, par exemple, s'oxydent à  $300^\circ\text{C}$  alors qu'il existe des composants qui s'oxydent à  $200^\circ\text{C}$  seulement [43, 44].

#### **I.6.2.2. vieillissement chimique**

Sous l'influence de l'environnement, les matériaux subissent des modifications remarquables qui traduisent un certain vieillissement dit vieillissement chimique. Comme dans le cas de tout type de vieillissement, le vieillissement chimique est accompagné d'une détérioration de la surface d'un isolant qui peut engendrer la détérioration des performances électriques [45]. En effet, pour de basses contraintes, les matériaux peuvent souffrir du phénomène d'érosion suite au bombardement des électrons et la dégradation chimique due aux gaz actifs générés par une décharge.

L'énergie des électrons attaquant un diélectrique, lors d'une décharge de moins de  $10^{-6}$  J, peut excéder 10 eV et peut donc détruire des liaisons moléculaires, sachant que quelques liaisons nécessitent des énergies plus faibles pour être détruites (3.5 eV pour la liaison C-H et 6.2 eV pour la liaison C=C) [46].

Le jaillissement d'étincelles peut augmenter la température au niveau de la surface de l'isolant, ce qui change la structure chimique de cette couche. Le changement dans la structure des molécules et la dissociation des liaisons dépendent de l'énergie de liaison. L'échauffement du matériau engendre des ruptures sous l'effet thermique et donc des réactions chimiques, comme le montrent les réactions (I.7), (I.8) et (I.9). Ainsi des groupes s'attachent et des radicaux libres se forment [43].



2

### a. Génération de l'ozone

L'énergie élevée de l'électron peut aussi générer l'ozone  $\text{O}_3$  dans l'air. L'ozone est un agent d'oxydation puissant qui peut être la source de réactions violentes avec de nombreux composés minéraux ou organiques. Son accumulation peut engendrer le claquage des polymères. Si dans la troposphère ( $h \leq 10\text{km}$ ), l'ozone se forme par oxydation photochimique de  $\text{CO}$ ,  $\text{CH}_4$  et d'autres hydrocarbures en présence d'oxyde d'azote, dans la stratosphère ( $10\text{km} \leq h \leq 50\text{km}$ ) l'ozone se forme suite à la dissociation d'une molécule d'oxygène par l'action des radiations solaires ( $\lambda < 250\text{nm}$ ). L'atome libre  $\text{O}$ , ainsi formé, s'associe à une molécule d'oxygène [47].



### b. Hydrolyse

Sous l'influence de l'humidité ( $\geq 95\%$ ), certains polymères peuvent se dégrader. La présence de vapeur d'eau conduit à des réactions directes avec des matériaux organiques. Ces réactions dites réactions d'hydrolyse, ont pour effet de briser des liaisons chimiques et donc gonfler les structures amorphes, ce qui facilite la pénétration d'autres polluants et donc l'augmentation du poids de l'isolant.

L'humidité joue un grand rôle dans la dégradation du polymère, vu son influence sur la valeur des charges cumulées. C'est la raison pour laquelle la durée de vie des polymères diminue avec l'augmentation du taux d'humidité. En effet, à un degré d'humidité élevé, les liaisons chimiques rompent facilement et l'isolant se dégrade rapidement [44, 45, 46].

Quand un isolant est exposé aux conditions d'humidité, associées à des conditions électriques, un arc électrique se produit, ce qui conduit à l'échauffement du matériau, pouvant engendrer des réactions chimiques. C'est ainsi que dans un laboratoire de recherche, le rôle de l'humidité n'est pas seulement de déterminer le taux de dégradation observé à la fin du test, mais elle influe aussi sur la nature du mécanisme de dégradation qui se produit sous chaque condition de test [43, 44].

### I.6.2.3. vieillissement physique

Lors du vieillissement physique, le matériau peut se fissurer même si sa composition chimique n'est pas modifiée. Ce genre de vieillissement peut se produire avec ou sans transfert de masse.

Le transfert de masse se fait soit par pénétration d'un solvant (dont l'eau) dans le matériau, ce qui provoque des fissures dans l'isolant, ou par migration des adjuvants suite à l'évaporation ou l'extraction. Le vieillissement sans transfert de masse se fait suite aux ruptures mécaniques dues aux chocs.

### I.6.2.4. Vieillissement climatique

Le processus de vieillissement et dégradation de toute surface est la conséquence d'une interaction chimique entre le matériau et la charge électrique, accentuée par l'action des contraintes environnementales [48], tel que le rayonnement électromagnétique dont les rayons UV et les rayons infrarouges, qui induisent une dégradation du matériau dite dégradation climatique.

Le rayonnement électromagnétique est considéré comme étant un flux de paquets d'ondes discrets qui se comportent comme des corpuscules distincts appelés photons, dont l'énergie est proportionnelle à la fréquence du rayonnement. Cette énergie est donnée par [49] :

$$E = h\nu = h \frac{C}{\lambda} = hC\bar{\nu} \quad (\text{I.12})$$

Avec :

$h$  : Constante de Planck ( $6,63 \cdot 10^{-34}$  J.s).

$\nu$  : Fréquence.

$C$  : Vitesse.

$\lambda$  : Longueur d'onde du rayonnement.

$\bar{\nu}$  : Nombre d'onde [ $\text{cm}^{-1}$ ]

Lorsqu'un photon passe au voisinage d'une particule, il peut être observé si et seulement si l'énergie du photon est exactement égale à la différence d'énergie entre l'état fondamental (l'état dont le niveau énergétique est le plus bas) et un des états les plus élevés de la particule. L'espèce (atome, molécule...etc.) passe à un état dit excité, selon la réaction suivante :



$M^*$  : espèce excitée

Après  $10^{-6}$  à  $10^{-9}$ s, l'espèce excitée cède son excès d'énergie à d'autres atomes ou molécules présents dans le milieu. C'est la relaxation à travers laquelle on peut avoir soit libération d'énergie thermique ou émission de rayonnement [49].

#### **I.6.2.5. Vieillissement électrique**

D'après C. Rodehed et son équipe [50], plusieurs études ont été faites sur la dégradation des polymères isolants. Ces études ont porté sur les phénomènes relatifs aux propriétés physiques comme par exemple la conductivité, la permittivité, les pertes diélectriques traduisant une consommation d'énergie transformée en chaleur et la résistance aux tensions appliquées.

Une étude a montré que le vieillissement électrique induit la formation d'une couche d'humidité sur la surface du polymère, qui serait l'une des raisons de l'accroissement de la conductivité électrique des matériaux polymères par l'effet du vieillissement [24].

La dégradation des isolants augmente les pertes diélectriques, ce qui peut engendrer des catastrophes se traduisant par le claquage de l'isolant dû au courant de fuite qui augmente avec la tension appliquée. Ainsi en augmentant la tension d'alimentation petit à petit, le courant de fuite ne se transforme en arc qu'après les étapes suivantes [50-52] :

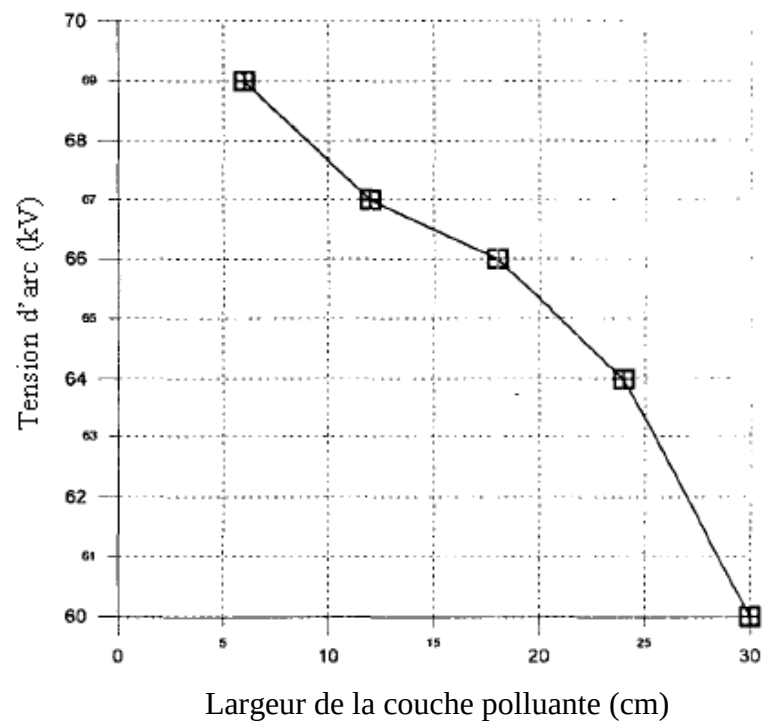
1. lors de l'application de la tension, le courant de fuite présente une forme pratiquement sinusoïdale.
2. En augmentant un peu la tension, chaque ondulation prend la forme d'un M.
3. Des impulsions apparaissent.
4. Le nombre d'impulsions augmente.
5. Un arc se produit.

Il est à noter que les électrons libres initiaux jouent un rôle important dans la multiplication des électrons et peuvent être accélérés lors des contraintes élevées pour former suffisamment d'avalanches et atteindre le claquage. Réduire le nombre d'électrons libres permet d'augmenter la tension de claquage du système isolant. Pour cela il est nécessaire d'ajouter un gaz électronégatif tel que le  $\text{SF}_6$  dans l'air, afin d'augmenter la tension de claquage [51].

Augmenter la tension de claquage est le souhait de tout chercheur. Plusieurs facteurs influent sur la valeur de cette tension, on cite par exemple, la pollution, la tension appliquée, la polarité et la pression.

##### **a. Influence de la pollution**

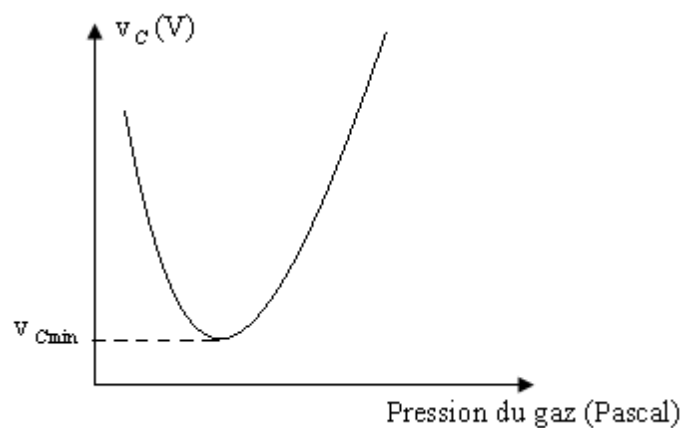
Une étude réalisée par M. Tegar et son équipe [51], montre que l'augmentation de la couche polluante induit la diminution de la tension faisant apparaître l'arc électrique (13% de la valeur initiale) comme indiqué par la figure ci-dessous.



**Fig. I.11.** Tension d'arc. Largeur de la couche polluante [51].

### b. Influence de la pression

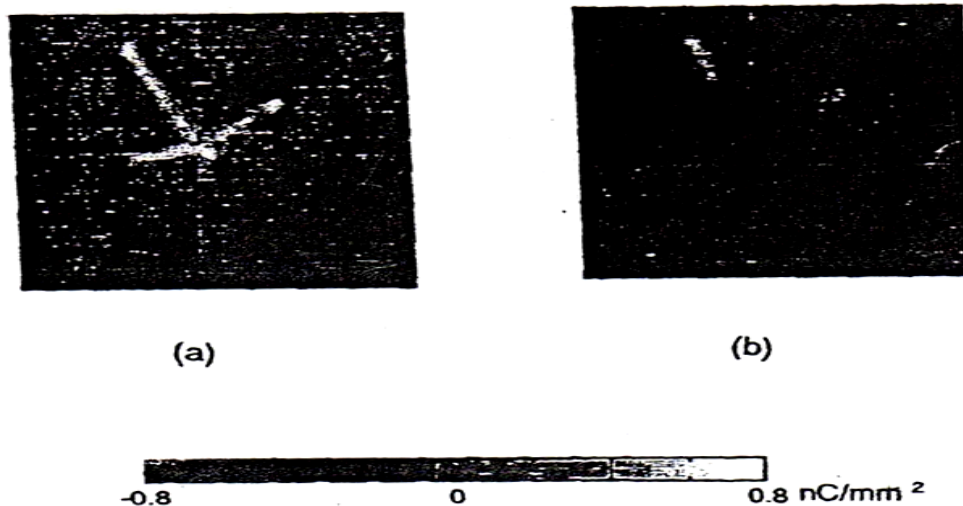
La pression est un autre facteur, pas moins important que les autres facteurs, qui influe sur la tension de claquage. Dans le cas de deux électrodes planes en parallèle, par exemple, cette tension varie avec la pression suivant la courbe de Paschen comme le montre la figure 12 [53].



**Fig. I.12.** Courbe de Paschen pour tension de claquage variant avec la pression du gaz [53].

### c. Influence de la polarité sur la nature d'une décharge électrique

La nature de la décharge le long d'une surface isolante est aussi influencée par le type de polarité de la tension appliquée. La figure I.12 montre clairement que lors d'une alternance positive (cas du BSO : Bismuth SiliconOxide), des steamers positifs prennent naissance à partir de la pointe de l'électrode, puis des charges négatives apparaissent durant l'alternance négative le long d'une surface de diamètre inférieur à celui occupé par les charges positives, neutralisant ainsi une partie de ces dernières [54].



**Fig. I.12.** Distribution des charges surfaciques sous contraintes alternatives sous une pression de 1atm pour une la tension de +4 kV(a) et -4 kV (b) [54].

## I.7. Conclusion

La première partie de ce chapitre présente un survol sur les matériaux isolants et plus particulièrement les polymères employés en génie électrique. Une présentation des différentes structures de ces matériaux a été faite, afin de les classifier en familles dans le but de faciliter leur utilisation dans les systèmes d'isolation électrique. Les différents phénomènes telle que la polarisation, ont été ensuite abordés.

Dans la deuxième partie du chapitre, nous avons présenté le mécanisme de dégradation et de transformation de la surface des solides isolants, à travers lequel nous avons exposé les différents phénomènes induisant les différents types de vieillissement.

## **CHAPITRE II**

### **ESPECES GENEREES PAR UNE DECHARGE ELECTRIQUE**

## II.1. Définition d'une décharge électrique

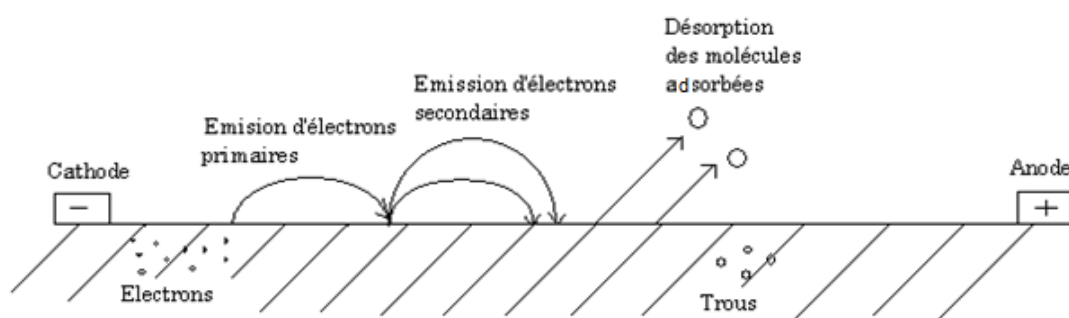
Une décharge électrique désigne le passage d'un courant électrique à travers un isolant. C'est un phénomène qui se produit lorsqu'un élément ou composant électrique perd brusquement sa charge sous l'effet d'un potentiel électrique. Ainsi, des réactions chimiques peuvent se produire et donner naissance à des espèces qui seront transportées par différents mécanismes. L'apparition de ces décharges est en rapport avec le type d'isolant ainsi que les conditions de service, comme la pression et la tension [55, 4, 56].

Le phénomène de décharges électriques est très complexe, notamment pour les décharges qui s'étendent avec discontinuité, vu le changement du mécanisme de leur propagation [57]. C'est un phénomène non désiré chez les industriels, mais utile dans le cas de la recherche notamment en électrotechnique. On utilise, par exemple, les décharges partielles comme technique de diagnostic afin de détecter d'éventuels défauts dans un appareil notamment au niveau du système d'isolation électrique [58].

## II.2. Origine de la décharge

Plusieurs facteurs, parmi lesquels on peut citer les rayons UV, les rayons  $\gamma$ , la faible pression atmosphérique, la haute température et la pluie, sont à l'origine de l'apparition des décharges surfaciques [59].

Le déplacement des électrons le long d'une surface ionise cette dernière, ce qui induit l'émission d'électrons secondaires à la surface de l'isolant, laissant derrière eux des charges positives qui entraînent la désorption des gaz adsorbés, comme le montre la figure II.1 schématisant une expérience réalisée sur un échantillon de silicone.



**Fig.II.1.** Modèle d'une décharge le long de la surface de la silicone [59].

Les ions provenant de la surface ou de l'atmosphère peuvent être accélérés suite à l'application d'un champ électrique. Ces ions peuvent se combiner avec les électrons pour émettre une grande énergie photonique.

Pour toute surface isolante, la décharge prend naissance dans la région proche d'une électrode et se dirige vers l'électrode opposée. La vitesse de propagation de cette décharge dépend des conditions et de la forme de l'onde [60].



### II.3. Généralités sur les décharges dans les gaz

La haute tension exige l'utilisation des isolants de bonne qualité, les gaz en constituent un des éléments de base. L'air est le gaz le plus utilisé vu ses bonnes qualités isolantes gratuites et sa large disponibilité dans la nature. Cependant, les gaz et en particulier l'air, souffrent du problème d'ionisation et de perturbation qui constitue le sujet de nombreux travaux depuis environ un siècle. Ces travaux ont permis d'expliquer les mécanismes fondamentaux des décharges électriques et les phénomènes de claquage, notamment dans la géométrie pointe-plan [46, 61]. En effet, les décharges dans les gaz regroupent plusieurs processus tels que : l'ionisation, l'attachement ou la photo - émission, qui interviennent lors de l'application d'un champ électrique suffisamment important [62]. Néanmoins il est difficile de prédire et d'expliquer le comportement d'une décharge dans les cas suivants :

- 1- Un intervalle d'air long sous les conditions d'un champ uniforme, haute pression et pression atmosphérique.
- 2- Un petit intervalle court de vide.
- 3- Des gaz voisins ou entourés par un isolant solide ou liquide.

En effet, dans les cas précédents, notamment sous champ électrique élevé, plusieurs mécanismes de conduction peuvent avoir lieu simultanément, entraînant ainsi la réduction progressive de la rigidité diélectrique.

A l'équilibre et en absence de forces extérieures, les vitesses des particules constituant un gaz n'ont aucune direction privilégiée et l'énergie de chaque particule peut être stockée.

Dans le cas d'un atome en translation, l'énergie est donnée par :

$$\frac{1}{2} m v^2 = \frac{3}{2} K T \quad (\text{II.1})$$

Où :

$v$  : vitesse quadratique moyenne de la particule.

$T$  : température thermodynamique.

$K$  : constante de Boltzmann ( $K=1,38.10^{-23}$  J/K)

$m$  : masse de la particule

Cette énergie peut être modifiée lors d'un mouvement suite à un choc élastique ou non élastique.

La probabilité qu'a une particule de donner lieu à une collision est donnée par :

$$P = \frac{dn_x}{dx} = n \sigma \quad (\text{II.2})$$

Avec :

$dn_x$  : Nombre de collisions subi par la particule pendant un déplacement élémentaire  $dx$ .

$n$  : Densité des particules du gaz.

$\sigma$  : Section efficace de collision.

La distance moyenne que peut parcourir un électron entre deux chocs successifs, appelé libre parcours moyen, est donné par l'équation (II.3).

$$\lambda = \frac{1}{N\sigma} = \frac{v\delta t}{n_c\delta t} \quad (\text{II.3})$$

Avec :

$N$  : Densité du gaz en nombre de molécules par unité de volume.

$n_c$  : Nombre de collisions par unité de temps.

$v$  : Vitesse moyenne de l'électron pendant un temps  $\delta t$ .

Plusieurs réactions peuvent se produire pendant une collision. Parmi ces réactions, on cite celles dues à l'excitation atomique, à l'ionisation par collision électronique, à la photo ionisation, à la recombinaison par ions, à la recombinaison ion<sup>+</sup>-électron, à l'attachement, au détachement et à la mobilité des charges.

### II.3.1. Excitation atomique

Lors d'un transfert de l'énergie d'un photon à un atome, un ion ou une molécule, la particule passe à un état d'énergie plus élevée appelé état excité. Le passage d'une espèce A de son état fondamental à son état excité A<sup>\*</sup> peut être représenté par la réaction (II.4).



Avec :

$h$  : constante de Planck =  $6,625 \cdot 10^{-34}$  Js

$\nu$  : Fréquence du photon.

Après un temps très bref ( $10^{-6}$  à  $10^{-9}$  s), l'espèce excitée revient à son état fondamental initial en cédant son excès d'énergie à d'autres atomes ou molécules présents dans le milieu. Ce phénomène de relaxation, qui entraîne une légère augmentation de température du milieu, est décrit par la réaction II.5 [63].



La quantité d'énergie thermique libérée par la relaxation est habituellement trop petite pour être détectée.

De même, un atome peut être excité par collision avec un électron suivant la réaction II.6.



### II.3.2. Ionisation par collision électronique

L'ionisation de l'atome se fait par choc électronique. On parle alors du processus  $\alpha$  ou d'avalanche.

### II.3.3. Recombinaison radiative

Ce rayonnement résulte de la capture d'un électron libre par un ion (réaction II.7), l'atome ainsi formé pouvant être sur son état fondamental ou sur un état excité [64].



Le processus inverse est la photo-ionisation.

### II.3.4. Recombinaison par ions

La recombinaison par ions s'effectue entre deux particules possédant des charges de signes différents. On définit un coefficient de recombinaison «  $a$  » ( $\text{m}^3/\text{s}$ ) tel que [65] :

$$-a \cdot n^+ \cdot n^- = \frac{dn^+}{dt} = \frac{dn^-}{dt} \quad (\text{II.8})$$

Avec :

$n^+$  : nombre de charges positives par  $\text{m}^3$ .

$n^-$  : nombre de charges négatives par  $\text{m}^3$ .

$a \approx 1,5 \cdot 10^{-12} \text{m}^3/\text{s}$  pour l'air et dans les conditions normales.

### II.3.5. Recombinaison ion<sup>+</sup>-électron

La recombinaison ion<sup>+</sup>-électron s'effectue suivant une réaction accompagnée par un dégagement d'énergie, sous forme d'un photon, égale à l'énergie d'ionisation. Cette énergie est donnée par :

$$h\nu = E_c + e v_i \quad (\text{II.9})$$

Avec :

$E_c$  : énergie cinétique de l'électron incident.

Les photons émis peuvent ioniser le gaz à une certaine distance, d'où le développement de streamers.

### II.3.6. Attachement

L'attachement d'un électron à un atome neutre conduit à la formation d'un ion négatif.

### II.3.7. Détachement

Dans le cas des gaz ionisés, l'ion négatif perd son électron supplémentaire préalablement attaché. Ce processus nécessite une énergie relativement faible mais il requiert un champ électrique dépassant 68kV/cm, à température et pression normales.

### II.3.8. Mouvement des charges dans un champ électrique (mobilité)

En présence d'un champ électrique  $E$  et suite à l'interruption de l'accélération des ions et des électrons par collision avec les molécules de gaz, on introduit une vitesse moyenne appelée vitesse de dérive  $\mu$ . La mobilité est définie par les équations (II.10) et (II.11) [66] :

$$\chi = \frac{\mu}{E} \quad (\text{II.10})$$

Elle est donnée aussi par la relation d'Einstein :

$$\frac{D}{\mu} = \frac{KT}{e} \quad (\text{II.11})$$

Avec :

$D$  : coefficient de diffusion.

$K$  : coefficient de Boltzmann.

$T$  : température absolue.

Dans le cas où l'énergie moyenne des électrons est supérieure à l'énergie thermique, le terme  $KT$  sera remplacé par cette nouvelle énergie et les électrons vont se disperser sur une distance plus grande.

## II.4. Décharges partielles

On appelle décharge partielle (DP) tout écoulement de courant localisé au sein d'un isolant séparant deux conducteurs électriques, sous l'effet d'un champ élevé.

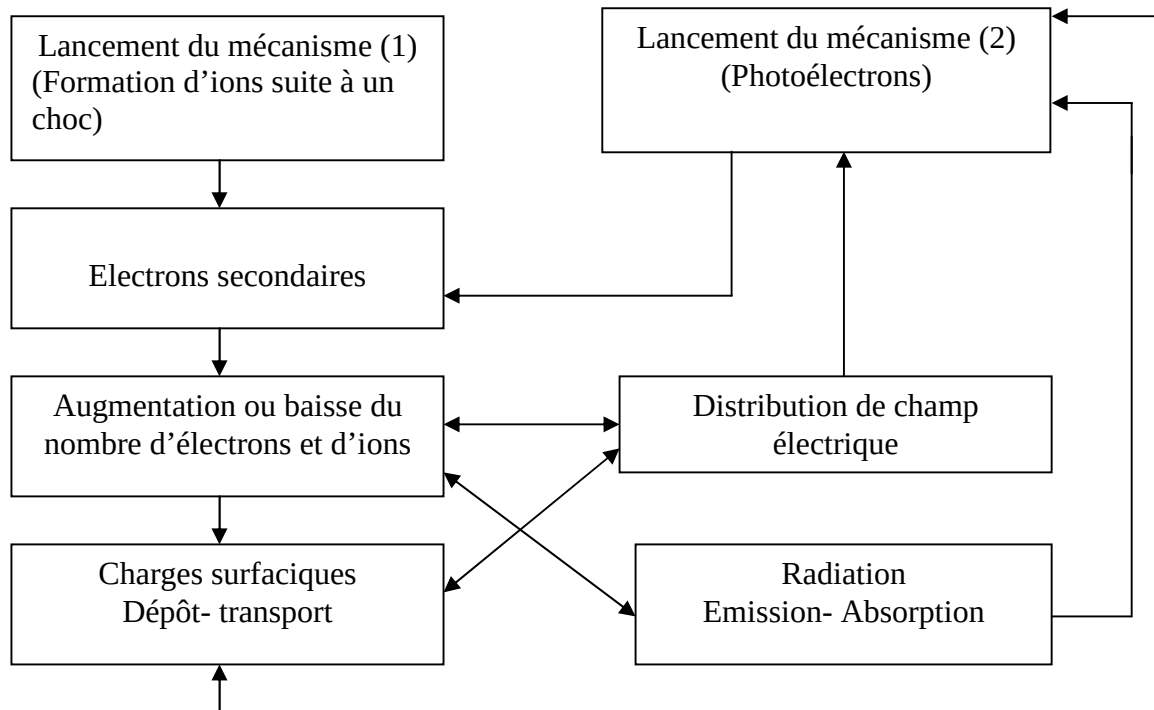
### II.4.1. Mécanisme de la décharge partielle

Habituellement, les décharges partielles prennent naissance lors d'un défaut dans un diélectrique solide ou dans une bulle au sein d'un liquide diélectrique, mais elles peuvent apparaître aussi à l'interface conducteur-diélectrique. Elles se manifestent sous plusieurs modes, ce qui avait compliqué la tâche aux chercheurs pour définir ces différents modes et donner une description générale pour ce phénomène. Seulement, le développement de la technologie a permis de découvrir tous les phénomènes qui ont une relation avec la décharge partielle, d'où la définition exacte de cette dernière.

En général dans un diélectrique, les décharges partielles prennent naissance dans une bulle gazeuse : la permittivité du gaz est très petite devant celle du matériau environnant et le

champ électrique est beaucoup plus important. Si la tension dépasse la limite permettant l'apparition de l'effet couronne pour le gaz contenu dans la vacuole, une décharge partielle prend naissance. Une fois amorcée, la décharge va progressivement détériorer l'isolant, conduisant finalement à un claquage du diélectrique et donc à la destruction de l'installation protégée.

La liaison entre différents types de processus de décharge, dont la décharge surfacique, est illustrée par le schéma bloc représenté par la figure II.2, qui indique les processus physiques normaux qui affectent l'initiation, la croissance et l'extinction de la décharge :



**Fig. II.2.** Modèle d'une décharge électrique (vieillesse négligée)

#### II.4.2. Modèle mathématique

La décharge partielle est un phénomène qui peut être décrit mathématiquement à l'aide d'équations différentielles. La résolution de ces équations semble être très difficile, impossible dans certains cas, vu le nombre important de paramètres qui rentrent en jeu.

#### II.4.3. Développement de la décharge partielle

##### II.4.3.1. Effet couronne

###### ➤ Définition

On appelle effet couronne, le phénomène d'ionisation d'un gaz isolant autour d'une électrode portée à la haute tension. Il apparaît lorsque la valeur maximale du champ électrique atteint celle du champ d'ionisation du gaz.

Plusieurs facteurs influent sur une décharge couronne et parmi ceux-ci, nous citons la nature du gaz, la densité de l'air, la température, l'humidité et la pression.

➤ **Influence de l'humidité [67]**

La décharge couronne est souvent due aux gouttelettes d'eau déposées à la surface d'un polymère. Ces dernières augmentent le champ électrique et peuvent donc induire une décharge couronne, qui est considérée comme l'un des mécanismes de vieillissement responsables de l'apparition de fissures le long d'un isolant. Ce champ s'intensifie lors du vieillissement de l'isolant.

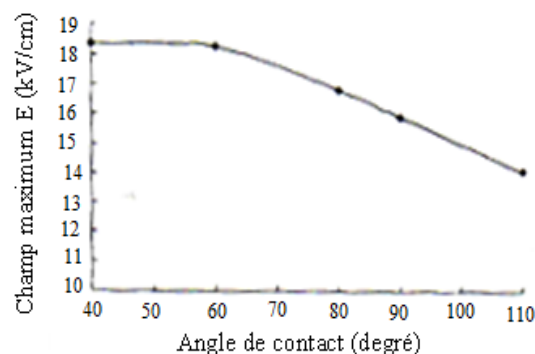
L'influence de l'effet couronne sur la dégradation de l'isolant n'est pas loin de celui du rayonnement UV. En effet, la lumière émise par l'effet couronne possède une longueur d'onde proche de celle émise par l'ultraviolet.

L'augmentation du champ électrique accélère la dégradation de l'isolant et détruit son hydrophobicité, ce qui diminue donc l'angle de contact de la gouttelette d'eau avec la surface du matériau. Cet angle forme un indice important pour l'hydrophobicité. Ainsi plus le polymère perd son hydrophobicité, plus la gouttelette s'allonge et plus l'angle de contact diminue.

La gouttelette d'eau est une espèce qui menace la vie de tout genre d'isolant. Elle réduit la distance entre les électrodes, dans le cas de deux électrodes, et augmente ainsi le risque d'une décharge couronne. Son mouvement implique son électrification et donc l'augmentation du nombre de charges.

• **Influence de l'angle de contact sur le champ électrique**

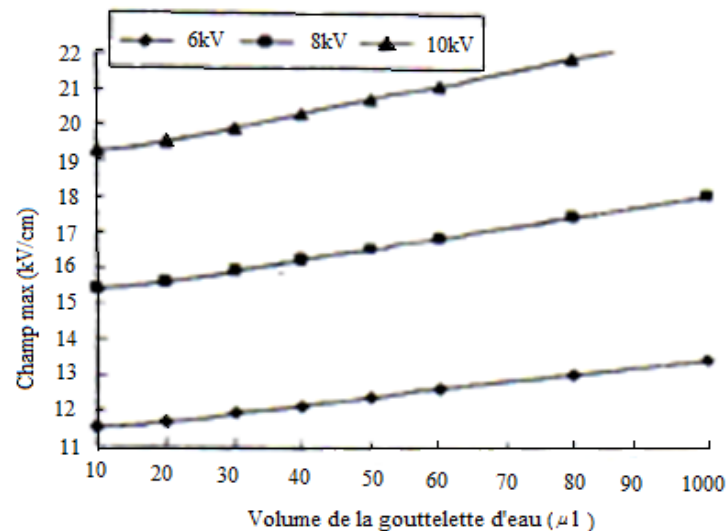
La variation du champ électrique  $E$  en fonction de l'angle de contact est donnée par la figure II-3, qui montre que dans le cas d'une gouttelette d'eau considérée comme étant une sphère de  $30\ \mu\text{l}$  sous  $8\text{kV}$ , le champ maximum  $E$  augmente avec la diminution de l'angle de contact [67].



**Fig. II.3.** Variation du champ max  $E$  calculé en fonction de l'angle de contact de la gouttelette d'eau [67].

### • Influence du volume de la gouttelette sur le champ électrique

La figure II.4 montre l'influence du volume de la gouttelette, supposée avoir la forme d'un hémisphère, sur le champ électrique. La valeur maximum de  $E$  augmente avec l'augmentation du volume de la gouttelette, qui peut être considérée comme un facteur important, affectant la distribution du champ électrique à la surface du polymère. Seulement, si nous gardons ce volume constant et nous faisons augmenter la tension appliquée, le champ  $E$  croît aussi [67].

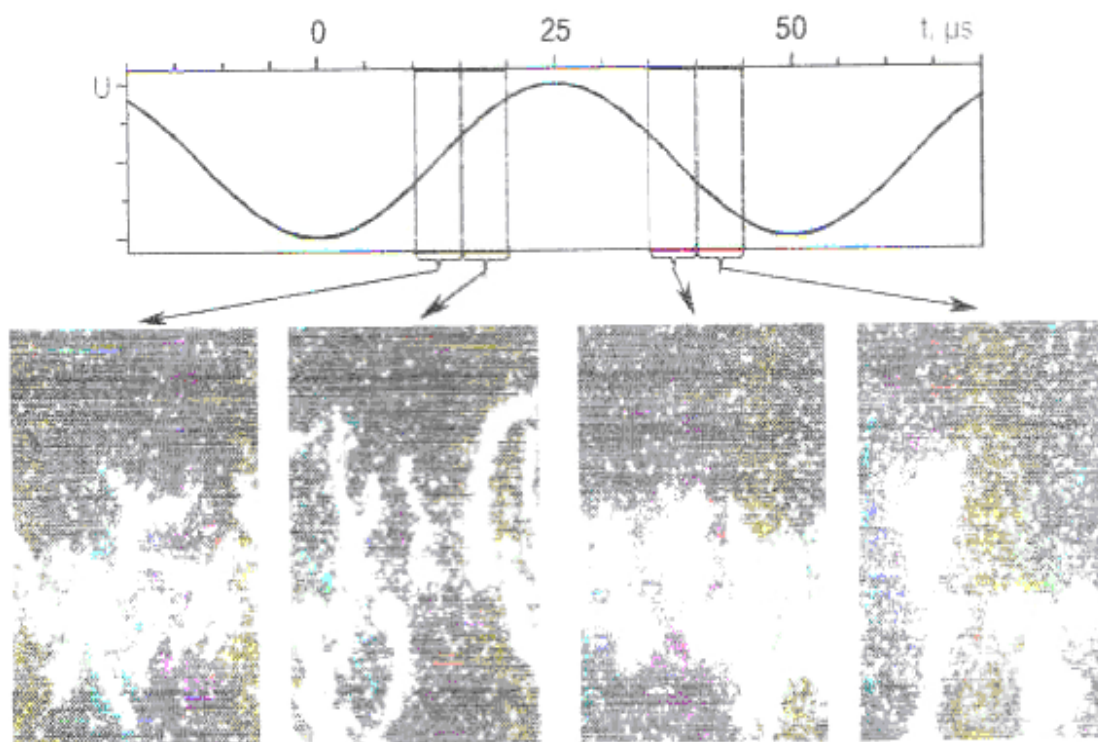


**Fig. II.4.** Champ maximum  $E$  calculé en fonction du volume de la gouttelette sous différents voltages [67].

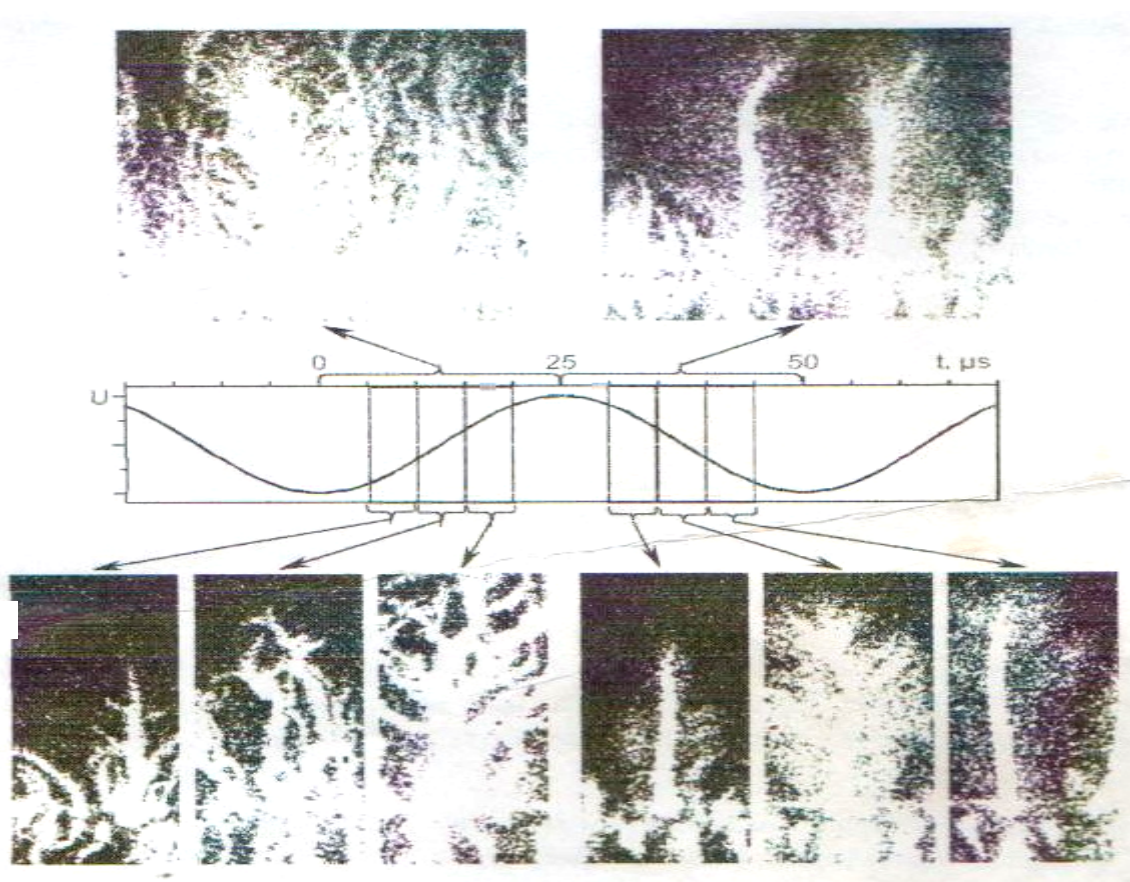
En plus du volume, la conductivité de la gouttelette d'eau constitue un facteur important pour la croissance du champ électrique et joue un rôle majeur sur le mode du développement de la décharge couronne. L'effet couronne décroît avec l'augmentation de la conductivité de la gouttelette quand son volume reste constant.

#### II.4.3.2. Effet d'un arc électrique

Le phénomène de l'étincellement a été observé lors de différents travaux et différentes expériences [59, 68], néanmoins le processus physique qui lui correspond n'est pas encore bien compris. Parmi les travaux réalisés dans ce domaine, l'expérience faite sur un groupement formé d'une électrode en fil à la surface d'un diélectrique plat et un prolongement d'une électrode métallique au côté verso. Une tension alternative est appliquée pour ce groupement et des décharges superficielles apparaissent. Les propriétés des décharges en volume (DV) et des décharges superficielles (DS) diffèrent. La longueur de la décharge DV est déterminée par l'intervalle du gaz tandis que les DS se propagent par bonds à la surface du diélectrique avec l'augmentation de la tension.



**Fig.II.5.** Structure des canaux sous tension alternative à faible amplitude (7.1 kV, temps d'exposition  $5 \mu s$ ) [68].



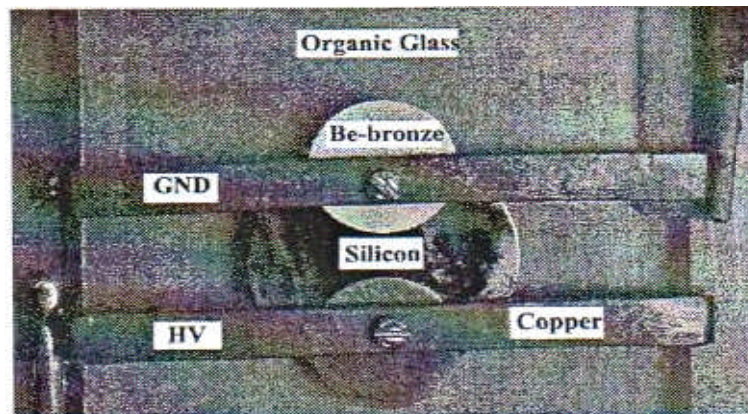
**Fig. II.6.** Structure des canaux sous tension alternative à forte amplitude (23kV) pour un temps d'exposition de  $25 \mu s$  et  $5 \mu s$  [68].



La structure de la décharge sous tension alternative est représentée par les figures II.5 et II.6 [68]. On remarque que pour l'électrode de polarité positive, le canal suivi par la décharge est fin. Son intensité et son épaisseur ne changent pas vraiment pour différentes tensions ni pour différentes distances par rapport à l'électrode (à l'exception de la région située tout près de l'électrode).

Pour l'électrode de polarité négative, les canaux sont plus courts, plus étendus à leurs extrémités et parfois avec dérivations, en comparaison avec la polarité opposée. Ils sont étroits à proximité de la cathode et deviennent de plus en plus larges avec la distance par rapport à la surface de l'électrode.

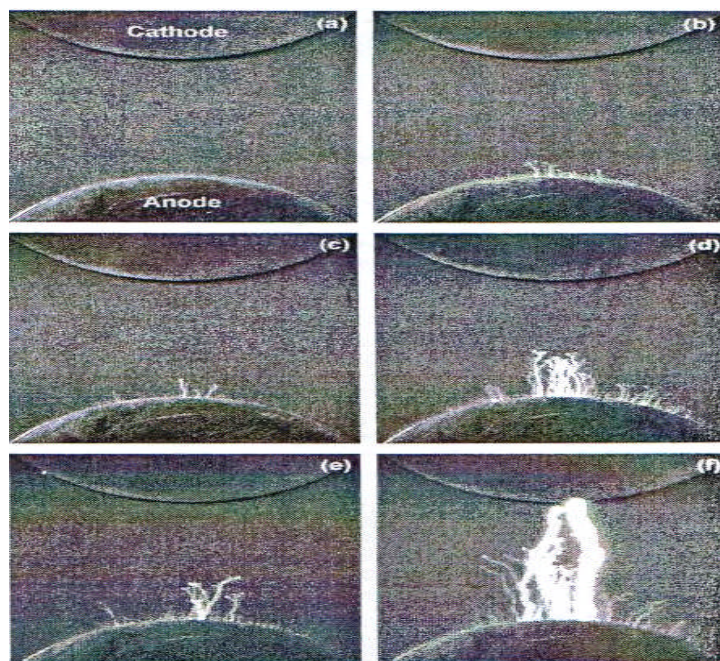
Les recherches actuelles se basent sur l'utilisation de la silicone et des échantillons de résine époxyde pour étudier le phénomène de décharge à la surface d'un semi-conducteur. L'une des expériences réalisées en Chine par un groupe de chercheurs [59], pour laquelle la configuration utilisée est indiquée par la figure II.7, a donné les résultats représentés sur la figure II.8.



**Fig. II.7.** Configuration du système électrode-échantillon [59].

Avant toute décharge électrique, on remarque l'apparition d'une faible intensité lumineuse comparable aux streamers qui peuvent être utilisés comme précurseur pour les décharges qui se terminent par la formation d'un arc électrique.

La figure suivante nous donne le processus du développement de la décharge, à travers l'échantillon de silicone sous une tension allant de 4kV à 9kV. Pour chaque photo, le temps d'exposition est de 1.3s.



**Fig. II.8.** Processus de développement de la décharge surfacique sous différentes tensions (a) 4kV, (b) 5kV, (c) 6kV, (d) 7kV, (e) 8kV et (f) 9kV [59].

Pour différentes tensions appliquées, on remarque l'apparition d'une trace lumineuse le long de l'anode pour le cas (a), puis avec l'augmentation de la tension appliquée, des filaments lumineux apparaissent (figure II.8 (b)), la longueur et le nombre de ces derniers augmentent avec l'augmentation de la tension tel que le montrent les cas (c), (d) et (e) de la même image. Enfin vient le claquage pour le cas (f) où on remarque l'apparition d'un canal liant l'anode à la cathode.

## II.5. Etude des espèces générées par une décharge électrique

La physico-chimie des décharges à barrière diélectrique réalisées dans l'air et à pression atmosphérique a été largement étudiée. La littérature abondante nous permet de connaître les espèces chimiques formées lors du développement d'une décharge électrique. Deux grands types d'espèces chimiques apparaissent au sein de la décharge [69] :

- les espèces instables, excitées ou métastables, moléculaires ou atomiques ;
- les espèces stables formées par collision entre les espèces instables et les molécules neutres du gaz.

La décharge électrique peut provoquer des perturbations au niveau d'un isolant. Plusieurs espèces peuvent donc être produites et nous pouvons citer, par exemple, les espèces activées chimiquement suite à des collisions électroniques avec des molécules ambiantes, OH, O, H, N, O<sub>2</sub>, N<sup>+</sup>, N<sub>2</sub><sup>+</sup> et O<sub>3</sub>...etc. [70]. Cette manifestation engendre un changement dans le phénomène du mouvement de plusieurs espèces électroniques ou chimiques, ce qui induit un gain ou une perte d'énergie par ces dernières. La dissipation de cette énergie provient des caractéristiques atomiques, électroniques et vibratoires de la surface de l'isolant et illustre l'influence des perturbations sur les propriétés du matériel [71, 72].

### II.5.1. Etude du mouvement des électrons

En présence d'un champ électrique, l'électron gagne de l'énergie qui sera distribuée lors du phénomène d'ionisation ou de dissociation des molécules ou des atomes. Cette énergie est décrite par l'équation de Boltzmann suivante [71] :

$$\frac{dG}{du} = \sum_{i,j} [\sqrt{u+u_{ij}} \cdot v_{ij} (u-u_{ij}) f(u+u_{ij}) - \sqrt{u} \cdot v_{ij} f(u) + \sqrt{u-u_{ij}} \cdot v_{ji} (u-u_{ij}) f(u-u_{ij}) - \sqrt{u} \cdot v_{ji} f] \quad (\text{II.15})$$

Avec :  $f(u)$  : fonction de distribution de l'énergie de l'électron qui obéit à la condition de

normalisation correspondant à  $\int_0^{\infty} f \sqrt{u} \cdot du = 1$ ,

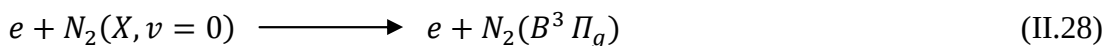
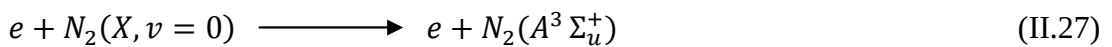
$$u = \frac{1}{2} mv^2 : \text{énergie de l'électron,}$$

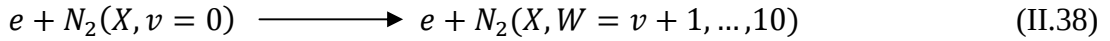
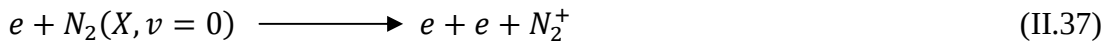
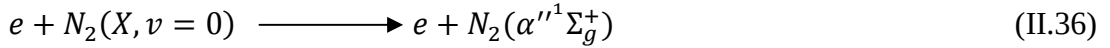
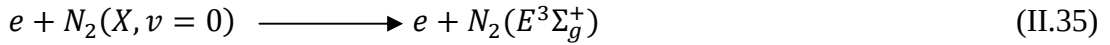
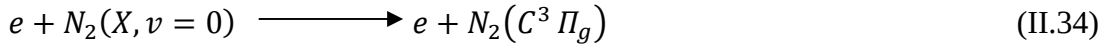
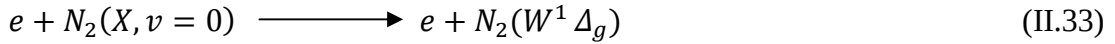
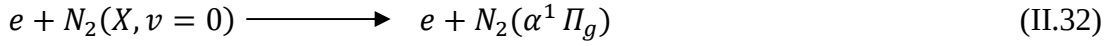
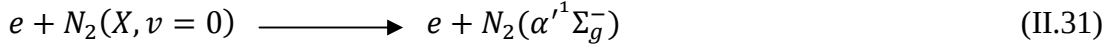
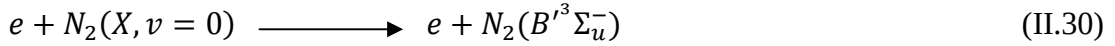
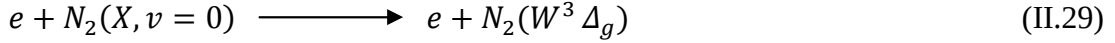
$u_{ij}$ ,  $v_{ij}$  et  $v_{ji}$  représentent respectivement la fréquence seuil, de collision inélastique et de collision super-élastique.

La collision non élastique entre les électrons énergétiques et les molécules ambiantes, lors d'une décharge, peut entraîner la dissociation, l'excitation ou l'ionisation de ces molécules pour donner OH, O, H, N, HO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, N<sup>+</sup>, N<sub>2</sub><sup>+</sup> ...etc., qui sont d'une grande importance dans la pollution des gaz. Les réactions (II.16) à (II.25) en montrent quelques exemples [73-75].



Les réactions (II.15) à (II.27) décrivent le processus de collision entre des électrons et des molécules d'azote N<sub>2</sub> se trouvant en mode de translation.





Ces réactions jouent un rôle important pour comprendre le comportement général de la décharge dans l'azote et des éléments qui rentrent en jeu tels que les molécules d'oxygène  $O_2$  ou la liaison NO qui peuvent rentrer en collision avec une molécule d'azote chargée et non stable [71].

En général, la collision des électrons avec les molécules d'azote excitées s'accompagne d'une émission lumineuse.

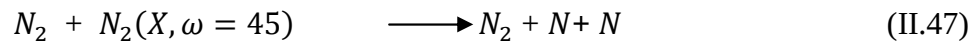
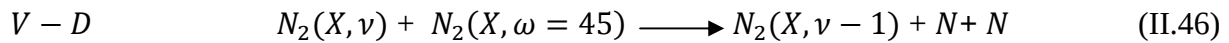
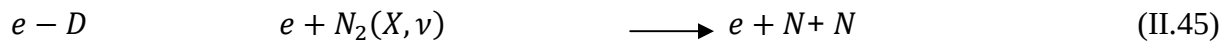
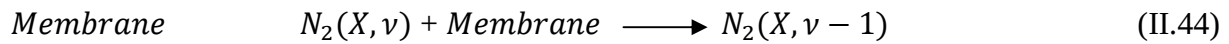
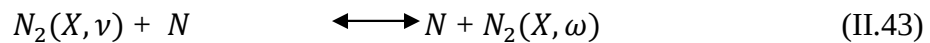
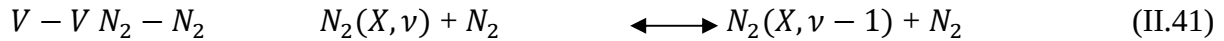
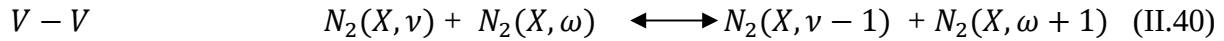
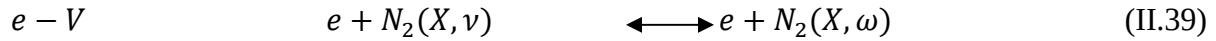
### II.5.2. Etude du mouvement vibratoire

Pour un gaz se trouvant dans un état excité comme l'azote, le niveau vibratoire joue un rôle important lors du phénomène de décharge. Suivant le type de collision et donc des réactions qui se produisent, on peut créer et atténuer des vibrations. Pour cela plusieurs cas peuvent se présenter. Les équations (II.39) à (II.47) nous donnent la cinétique de la molécule  $N_2(X^1 \sum_g^+, v = 0 - 45)$ . Elles décrivent quelques cas, qui se résument en les points suivants [71] :

- En présence d'un électron libre, un atome dans un état vibratoire, peut se retrouver dans un état vibratoire différent du premier.
- L'état vibratoire de deux atomes peut induire l'accélération de l'un et l'atténuation de l'autre.
- Une collision entre un atome en état de vibration et un atome en état de translation, peut diminuer le taux de vibration de l'un ou de l'autre.

-Un atome se trouvant dans un état vibratoire, en collision avec une membrane peut détruire le niveau vibratoire et donc diminuer le taux de vibrations.

-Dans le cas d'une vibration et d'une dissociation, deux cas peuvent se produire : des atomes moins vibrants et d'autres en translation, ou tous les atomes en état de translation.



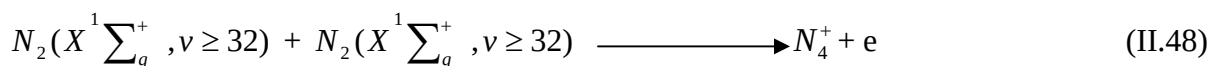
Les équations ci-dessus montrent que le mécanisme vibratoire peut induire un processus Vibration- Vibration ou un processus Vibration- Translation. L'énergie consommée par ces deux processus est due au mode vibratoire.

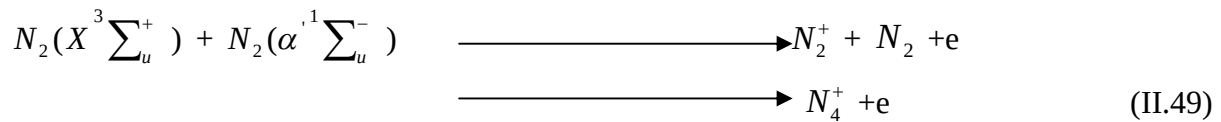
Il est à noter que chaque population vibrationnelle est accompagnée d'une température de vibration.

### II.5.3. Etude du comportement physicochimique des particules

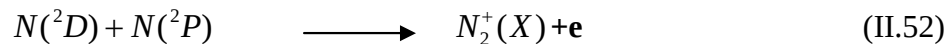
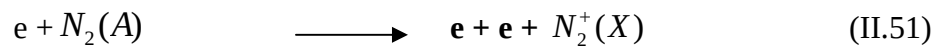
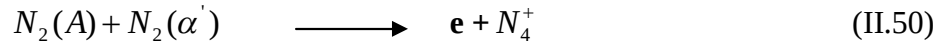
En plus du phénomène physique, un processus chimique peut survenir lors d'une décharge électrique. En effet, plusieurs réactions chimiques peuvent donner naissance à un processus d'ionisation et des particules chargées.

L'ionisation n'est pas due à la collision avec des électrons seulement, mais aussi à d'autres phénomènes. On peut avoir, suivant les réactions (II. 48) et (II.49), la formation d'ions et d'électrons libres suite à un choc entre deux molécules excitées se trouvant dans un état vibratoire, comme on peut avoir un mélange d'ions, d'atomes et d'électrons libres qui réagissent entre eux pour donner à leur tour un mélange d'ions + électrons libres, suite à une collision entre deux molécules métastables.





Parmi les phénomènes induisant le phénomène de décharge, nous citons la destruction et la recombinaison des molécules et des atomes. Cela est justifié par les réactions (II.50), (II.51) et (II.52) (cas de l'azote) [5].



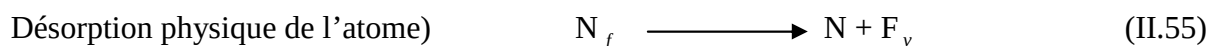
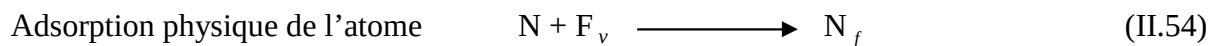
Ces réactions peuvent être accompagnées par un dégagement d'énergie, ce qui engendre le passage des électrons d'un état à un autre.

Toujours en se référant à l'azote, la réaction (II.53) représente un cas parmi beaucoup d'autres.

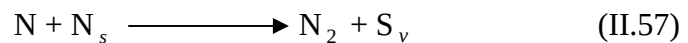


La recombinaison est un phénomène qui est souvent observé dans les plasmas lors d'un comportement physicochimique, elle dépend de la membrane du matériel.

L'étude de la recombinaison de l'azote pour une surface en silicone, montre que cette dernière est totalement adsorbante. On peut observer l'accrochage des atomes réversibles (physisorption) ou irréversibles (chimisorption). Ces réactions peuvent être écrites comme suit [5]:



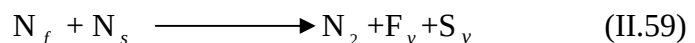
Recombinaison de l'atome adsorbé chimiquement avec l'atome de la phase gazeuse



Diffusion surfacique des atomes adsorbés physiquement



Recombinaison entre les atomes désorbés physiquement et ceux désorbés chimiquement, en diffusion



Avec :

$F_v$  et  $S_v$  : site libre d'adsorption physique ( $F_v$ ) et chimique ( $S_v$ ),

$N_f$  et  $N_s$  : atomes adsorbés physiquement et chimiquement,

N et N<sub>2</sub> : phase gazeuse des atomes et des molécules, respectivement.

Il est à noter que toute réaction chimique est accompagnée par un dégagement de chaleur. L'échauffement du gaz est dominé par les échanges d'énergie V-V et V-T ou par les états excités électroniquement, pour haute et basse pression respectivement [71].

### • Comportement de l'oxygène

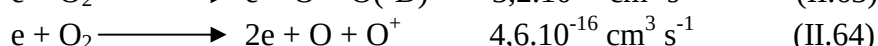
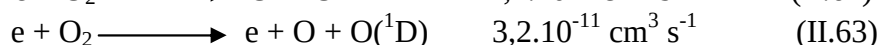
Lors d'une décharge, l'énergie électrique est beaucoup plus utilisée pour la production d'électrons énergétiques que pour l'échauffement du gaz [75].

Les molécules (ou atomes) d'oxygène réagissent en présence ou en absence d'autres corps. En effet, quand on additionne de l'oxygène à un gaz formé d'un mélange de N<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>, lors d'une décharge couronne, les molécules O<sub>2</sub> capturent des électrons libres pour se transformer en O<sub>2</sub><sup>-</sup>. L'attachement des électrons est favorisé par l'humidité, ce qui diminue la densité des électrons libres et leur énergie moyenne. Quand le taux d'oxygène est important, le risque de choc entre électrons et molécules d'O<sub>2</sub> croît et la chance d'attachement des électrons libres augmente pour donner des ions O<sub>2</sub><sup>-</sup> comme le montrent les réactions suivantes [73, 75] :



(M peut être O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O ou autre molécule).

L'interaction électron-molécule peut engendrer la dissociation de la molécule O<sub>2</sub> et les atomes O et O(<sup>1</sup>D) peuvent être produits [73-76].



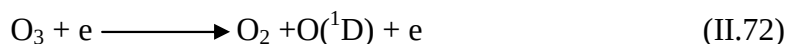
Les réactions (II.62), (II.63) et (II.64) sont à l'origine d'une grande production d'atomes d'oxygène.

Dans l'air la molécule O<sub>2</sub> est convertie en un atome O qui à son tour réagit avec O<sub>2</sub> pour donner une molécule d'ozone O<sub>3</sub> [74, 77].

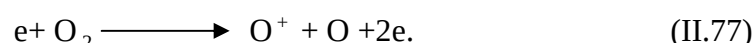
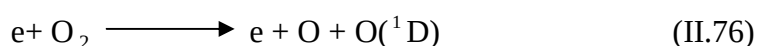


On note que la réaction (II.71) dure seulement  $14 \mu s$ .

De même, la molécule d'ozone peut se dissocier suite à un choc avec un électron, pour donner une molécule et un atome d'oxygène comme le montre la réaction (II.72).



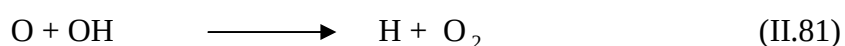
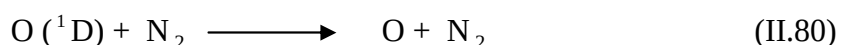
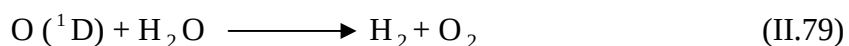
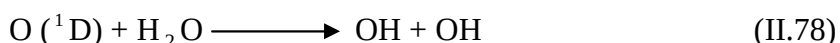
Lors de l'addition de l'oxygène  $O_2$ , un processus physicochimique peut donc se produire et on peut avoir le phénomène d'ionisation ou de dissociation suivant les réactions ci-dessous [70] :



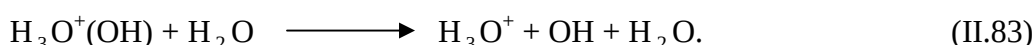
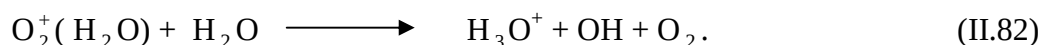
(M peut être une molécule  $N_2$ ,  $O_2$  ou  $H_2O$ ).

L'interaction entre  $O(^1D)$  et  $H_2O$  engendre la dissociation de la molécule  $H_2O$  pour donner naissance soit au radical OH ou bien à la molécule d'hydrogène  $H_2$ .

La réaction de  $O(^1D)$  avec  $N_2$  peut impliquer la formation d'une molécule  $N_2$  et d'un atome O qui à son tour peut réagir avec le radical OH.

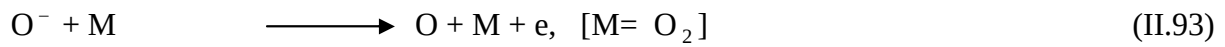
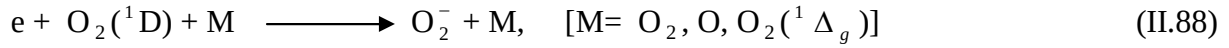
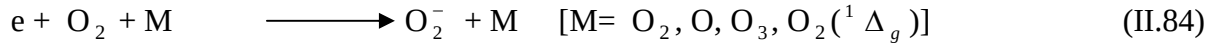


La diminution de la concentration de OH suite à la réaction avec O peut être compensée en présence des groupements  $O_2^+(H_2O)$  et  $H_3O^+(OH)$ . Ces groupements réagissent avec  $H_2O$  pour donner des radicaux OH comme le montrent les réactions suivantes.



Les réactions (II.84) à (II.97) montrent que dans le cas de l'oxygène pur, il peut y avoir formation de plus d'un type d'ions négatifs. Cependant on remarque qu'il existe des réactions qui permettent de transformer des ions négatifs en d'autres types d'ions. La destruction des ions négatifs peut se faire sous un processus autre que celui de la recombinaison ion-ion [78].





Sous forme d'ion, l'oxygène peut servir donc de source d'électrons comme dans le cas de la réaction suivante [78] :



## II.6. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons rappelé quelques connaissances liées aux décharges électriques. Nous avons essayé de faire une étude bibliographique sur l'origine d'une décharge électrique, son processus de développement et quelques paramètres influençant sur ce dernier.

Certaines contraintes telles que l'humidité et le champ, peuvent affecter les propriétés d'un matériau et lui faire perdre ses qualités d'isolant, ce qui lui cause la dégradation, car une fois amorcée, la décharge va progressivement détériorer l'isolant, conduisant finalement à un claquage du diélectrique. D'où la nécessité de décrire ce phénomène mathématiquement, un point ayant fait l'objet d'une partie de ce chapitre, afin de pouvoir donner des solutions et minimiser les dégâts pouvant affecter une installation électrique.

## **CHAPITRE III**

### **DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET MODES OPERATOIRES**

### III.1. Introduction

Nous donnons dans ce chapitre une description détaillée des différentes techniques expérimentales et d'analyse, concernant l'interaction entre une décharge électrique et la surface d'un solide isolant. Il regroupe les différentes parties de la chaîne constituant le dispositif de vieillissement électrique et les appareils de mesure et d'analyse utilisés pour examiner nos échantillons, afin de suivre leur comportement avant et après la dégradation.

### III.2. Choix du système d'électrodes utilisé pour générer la décharge couronne

Notre but est de créer un champ divergent le plus homogène possible pour traiter nos échantillons à la décharge couronne. La configuration pointe - plan est utilisée pour se placer dans les conditions de champ divergent. L'utilisation de pointes métalliques pour l'étude des décharges est assez courante. Cela est dû à l'effet de pointe, qui permet d'obtenir localement un champ intense favorisant ainsi le claquage électrique des gaz [79]. L'expression du champ axial (suivant l'axe Z de la pointe) en approximation hyperboloïde est donnée par [80]:

$$E_z = \frac{2U}{R \ln(4d/R)} \quad (\text{III.1})$$

$U$  : tension appliquée aux électrodes ;

$d$  : distance inter électrodes ;

$R$  : rayon de courbure de la pointe.

Plus  $R$  est faible, plus le champ local au niveau de la pointe n'est élevé et sa distribution est inhomogène. Cette inhomogénéité est caractérisée par le facteur de non uniformité  $\beta$  ou son inverse appelé facteur d'utilisation du champ ou facteur de forme de Schweiger, noté  $\eta$ . Ce dernier est défini comme étant le rapport entre le champ moyen dans l'espace inter électrodes et le champ maximal, c'est-à-dire le champ au niveau de l'électrode acérée (électrode de plus faible rayon de courbure) [81].

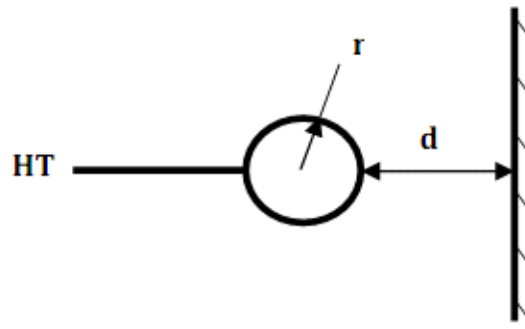
Si  $E_{\max}$  est la valeur maximale du champ dans l'intervalle, le facteur d'utilisation du champ noté  $\eta$ , est donné par l'équation (III.2):

$$\eta = \frac{E_{\text{moy}}}{E_{\max}} = \frac{U/d}{E_{\max}} = \frac{U}{E_{\max} d} \quad (\text{III.2})$$

$$\eta = 1/\beta$$

La valeur de  $\eta$  est comprise entre 0 et 1. Plus  $\eta$  est proche de 1, plus le champ sera uniforme, au contraire, quand il est suffisamment bas, le champ électrique au voisinage de l'électrode acérée est très grand.

La figure III.1 schématise la configuration sphère-plan.



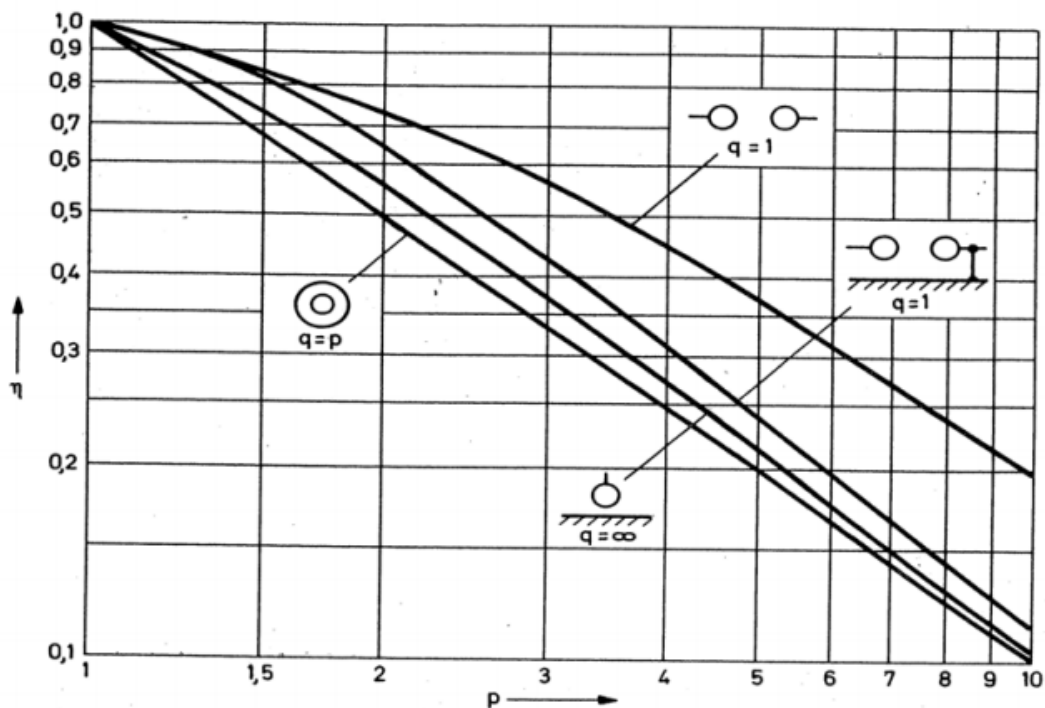
**Fig. III.1.**Electrode sphère – plan

Les valeurs de  $\eta$  sont calculées à l'aide de graphes donnant le coefficient d'utilisation du champ en fonction des valeurs de  $p$ .  $p$  étant un facteur dont l'expression est donnée par l'équation

$$p = \frac{d+r}{r} \quad (\text{III.3})$$

$d$  étant la distance inter électrodes et  $r$  le rayon de courbure de l'électrode haute tension.

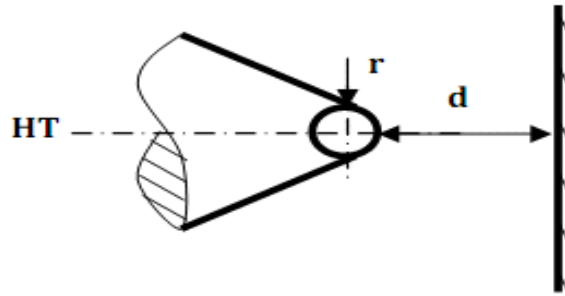
La figure III.2 [82] permet de déterminer les valeurs du facteur d'utilisation du champ à l'aide de  $p$  pour la configuration sphère – plan.



**Fig. III.2.**Courbes donnant le facteur d'utilisation pour différentes configurations en fonction de  $p$  et  $q$  [83]

Dans le cas d'un système point - plan (figure III.3), le coefficient d'utilisation en approximation hyperboloïde est calculé à partir de l'équation (III.3).

$$\eta = \frac{\ln(\sqrt{p} + \sqrt{p-1})}{\sqrt{p(p-1)}} \quad (\text{III.4})$$



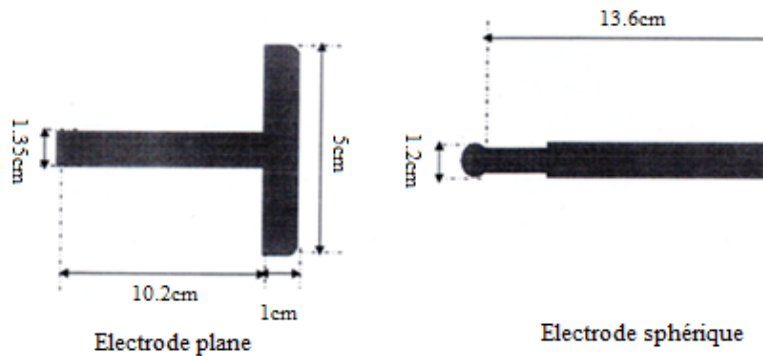
**Fig.III.3.**Electrode pointe – plan

Le rayon de la sphère de notre système d'électrodes, dont les dimensions sont données par la figure III.4, est de 6mm et celui de la pointe est de 0.5mm. En appliquant l'équation (III.4) pour un intervalle inter-électrodes de 6mm, on obtient deux valeurs différentes pour le coefficient d'utilisation  $\eta$ :

$\eta = 0.15$  dans le cas de la configuration pointe-plan ;

$\eta = 0.62$  dans le cas de la configuration sphère-plan.

Les valeurs obtenues de  $\eta$  montrent bien que le champ au niveau de la sphère est plus homogène que dans les cas de la pointe.



**Fig.III.4.** Electrodes et leurs dimensions

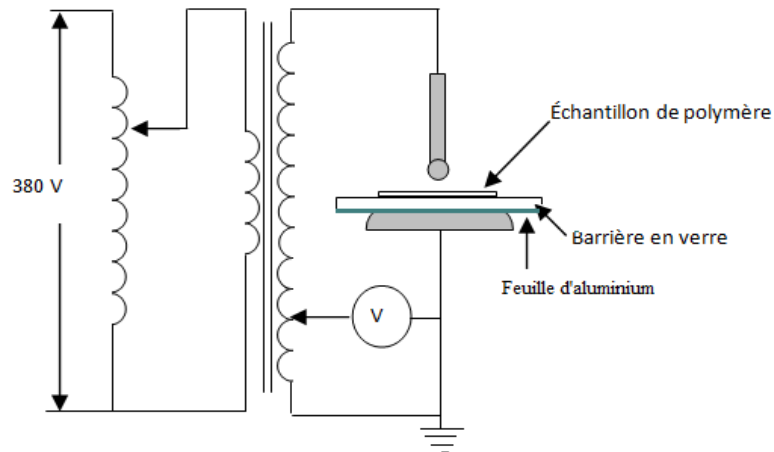
### III.3. Dispositifs expérimentaux

#### III.3.1. Dispositif expérimental de traitement des échantillons à la décharge couronne.

Le dispositif expérimental utilisé pour générer les décharges électriques est représenté par la figure III.5. Il est constitué d'un transformateur d'essai et d'un système d'électrodes sphère-plan. L'électrode sphérique de 6mm de rayon est reliée à la haute tension et l'électrode plane

de 5cm de diamètre est mise à la terre. L'ensemble est placé dans une cage de Faraday. L'électrode sphérique est remplacée par une pointe lors de l'étude des courants de décharge.

Pour soumettre les divers échantillons à la décharge électrique, nous les avons placés sur un disque en verre de 0.5cm d'épaisseur et de 10cm de diamètre bien nettoyé auparavant. Le disque en verre constitue une barrière diélectrique dont le rôle est d'éviter le passage de la décharge à l'arc entre les deux électrodes. Sur la face postérieure du disque, nous avons collé une feuille d'aluminium de même diamètre que le disque en verre pour assurer une meilleure adhésion entre le verre et l'électrode métallique. Les deux électrodes sont portées par un support en bakélite.



**Fig.III.5.** Dispositif expérimental pour générer la décharge couronne

#### **a. Source de tension (Transformateur d'essai)**

Le système d'électrodes est alimenté à l'aide d'une tension alternative délivrée par un transformateur haute tension (100 kV, 50 Hz, 10 kVA), monophasé destiné à effectuer des essais diélectriques sur les isolants (figure III.6). L'autotransformateur dont on se sert pour faire varier la tension d'alimentation se trouve au niveau du pupitre de commande.



**Fig.III.6.** Transformateur d'essais

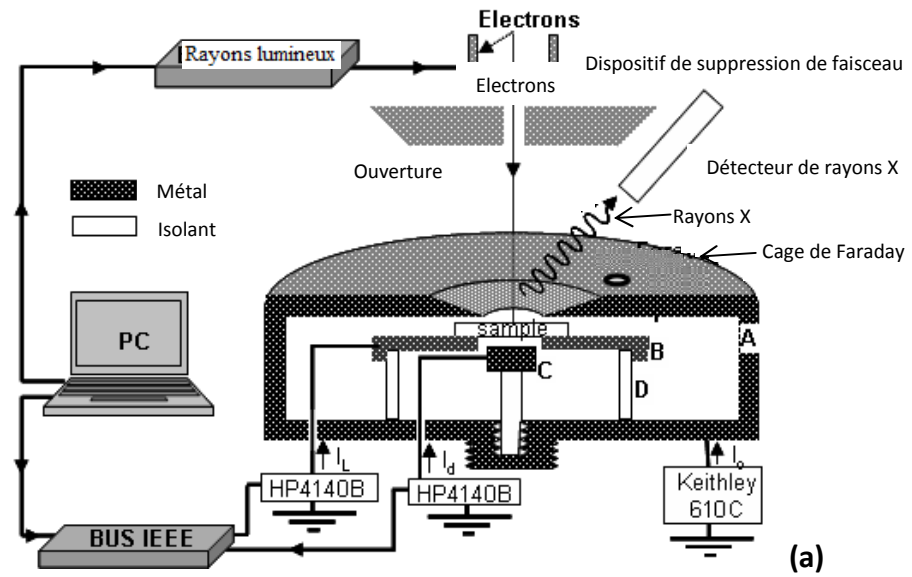
### III.3.2. Dispositif expérimental de mesure des courants d'influence et de fuite

Le schéma du dispositif expérimental permettant de mesurer les courants d'influence et les courants de fuite, est donné par la figure III.7. Ce dispositif, placé dans la chambre du MEB, comporte :

- Une enceinte cylindrique en métallique (A) liée à la masse à travers un pico-ampèremètre (Keithley 610 C) ayant pour rôle d'éliminer toute source d'électrons parasites (électrons secondaires et rétrodiffusés émis par les parois de la chambre objet du MEB) qui peuvent être collectés par les électrodes (B) et (C) et entraînant ainsi une perturbation dans la mesure des courants ;
- Un disque en laiton de 0,5 mm d'épaisseur formant l'électrode (B), destinée à la mesure du courant de fuite  $I_L$ , avec une ouverture au centre de 0.9 cm de diamètre. Ce disque est relié à un pico-ampèremètre qui est à son tour relié à la masse ;
- Une électrode C en forme de disque, en laiton, relié à un pico ampèremètre pour la mesure du courant d'influence  $I_d$  et placée au milieu de l'enceinte métallique sur un disque isolant en téflon permettant d'éviter tout contact électrique entre (C) et (A) ;
- Un cylindre (D) en céramique destiné à l'isolation galvanique entre l'électrode B et le blindage A.

L'échantillon de PMMA repose sur le disque (B) avec un contact électrique intime assuré par la métallisation de la périphérie de sa surface inférieure (film d'argent de 15 nm d'épaisseur). Il est placé en dessous de l'ouverture circulaire de l'enceinte métallique (A) sans aucun contact avec cette dernière.

Le pico-ampèremètre (HP 4140 B) est interfacé à un micro-ordinateur (P.C).



**Fig.III.7.** Dispositif expérimental de mesure des courants d'influence et des courants de fuite :(a) Vue en coupe- (b) photographie

A : blindage cylindrique en métal,

B : disque en laiton avec un trou en son centre, relié à un pico-ampèremètre pour la mesure du courant de fuite  $I_L$ ,

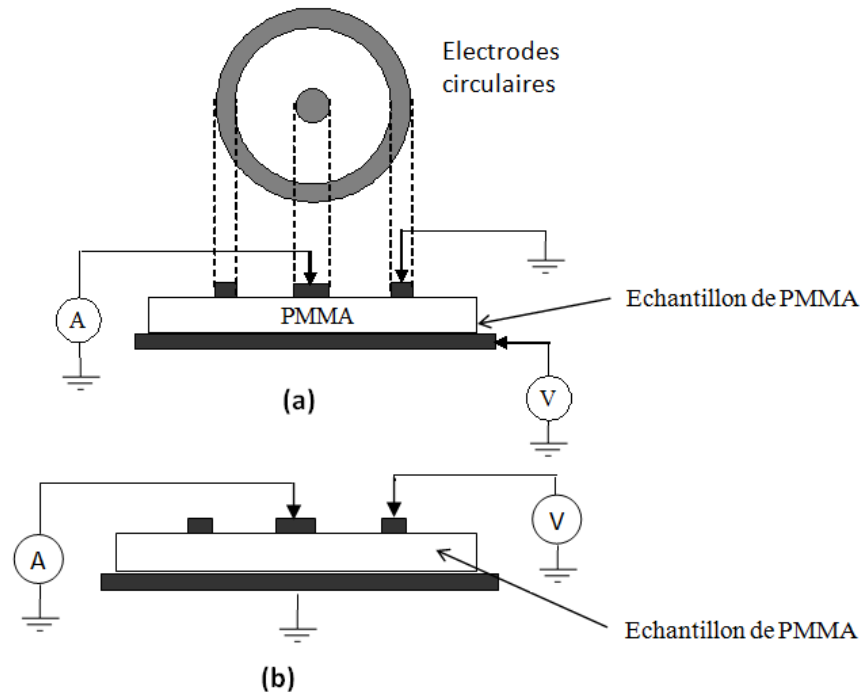
C : disque en laiton relié à un pico ampèremètre pour la mesure du courant d'influence  $I_d$ .

D : cylindre en céramique destiné à l'isolation galvanique entre l'électrode B et le blindage A.



### III.3.3. Dispositif expérimental de mesure de résistivité

La figure III.8 représente le dispositif de mesure de la résistivité. Il comprend deux sondes en forme d'anneaux concentriques et un pico-ampèremètre de type HP4140B qui permet également d'appliquer une tension de polarisation variant de -100V à +100V.



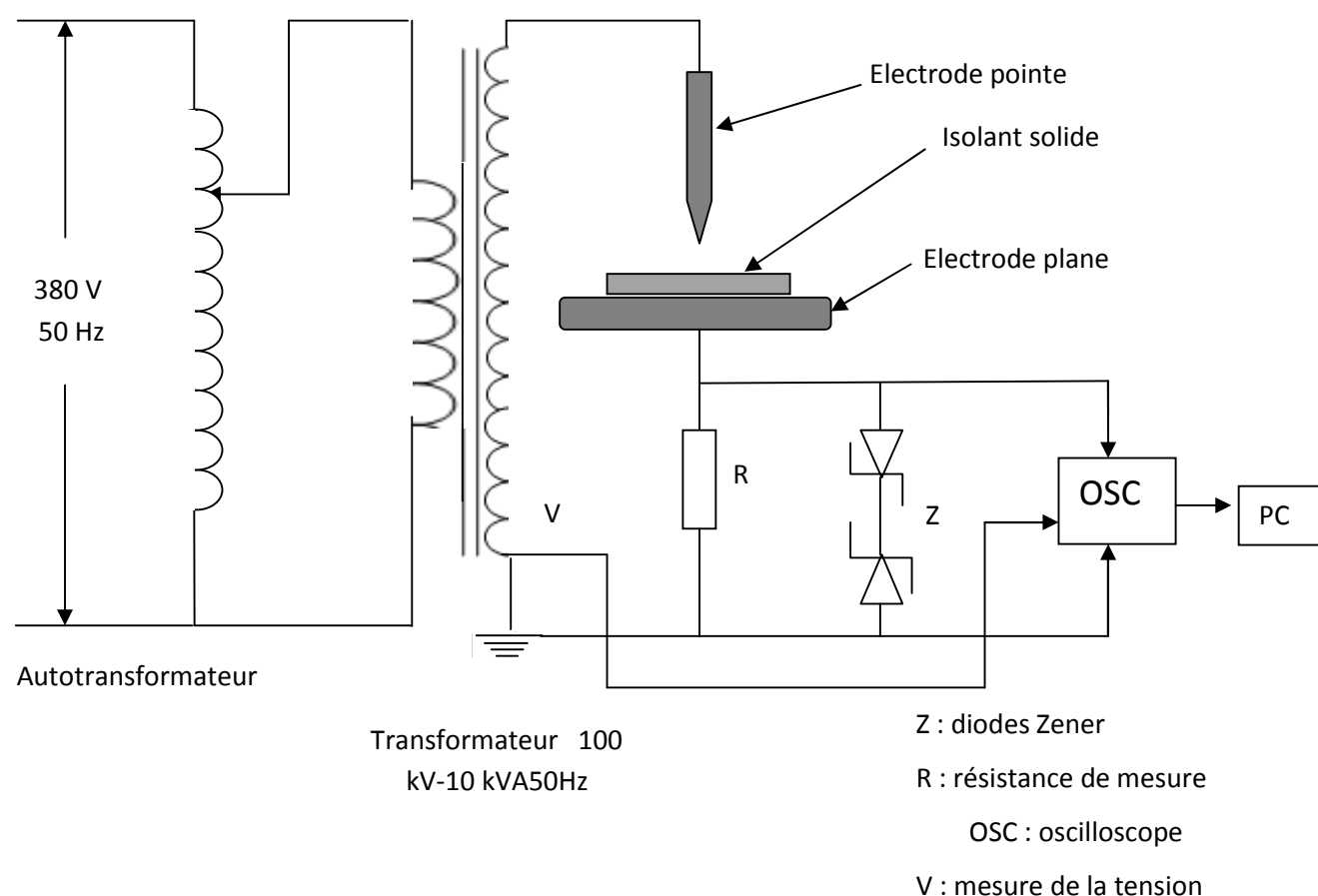
**Fig. III.8.** Montage utilisé pour la mesure de la résistivité volumique (a) et de la résistivité surfacique (b)

### III.3.4. Dispositif expérimental de mesure des courants de décharge

Le dispositif expérimental utilisé pour la mesure des courants de décharge est donné par la figure III.9. Toutes les masses sont mises à la terre avec des câbles coaxiaux pour éliminer les parasites qui peuvent influencer les mesures.

Le courant de décharge est enregistré à l'aide d'un oscilloscope à mémoire que nous avons branché aux bornes d'une résistance de  $940\ \Omega$ . L'oscilloscope de marque HAMEG type HM1705-2 présente une bande passante de 150MHz et un taux d'échantillonnage de 200 MS/s. Les informations obtenues et enregistrées par l'oscilloscope sont transmises à un ordinateur via une interface RS232 pour y être traitées.

Pour assurer la protection de l'oscilloscope contre d'éventuelles surtensions, nous avons placé des diodes zener, montées tête-bêche, en parallèle avec la résistance de mesure R. Cette dernière sera court-circuitée dès que la tension atteindra une valeur limite fixée à ses bornes.



**Fig.III.9.** Schéma du dispositif expérimental destiné pour la mesure des courants de décharge.

### III.4. Préparation des échantillons

#### III.4.1. Polyméthacrylate de méthyle (PMMA) et copolymère SAN/PMMA

Lors de nos analyses, nous avons utilisé des échantillons de PMMA sous forme de plaques de forme circulaire de 3cm de diamètre et 3mm d'épaisseur et d'autres sous forme de films ayant une épaisseur d'un dixième de millimètre. Les échantillons en forme de disques ont été découpés d'une même plaque afin de respecter leur homogénéité. Cependant, pour préparer les échantillons en forme de films, nous avons dissout un morceau de PMMA dans de l'acétone et avons étalé la solution obtenue sur un disque en verre. Après l'évaporation de l'acétone au bout de quelques heures, nous avons obtenu les films de PMMA.

Afin d'éviter toute impureté se trouvant à la surface de l'échantillon, qui risque de fausser les résultats d'observation, l'échantillon est bien nettoyé à l'alcool avant chaque essai, puis séché.

Lors de nos essais, nous avons utilisé aussi des échantillons constitués d'un mélange de PMMA et de SAN, sous forme de film, dont l'épaisseur est d'un dixième de millimètre. Pour réaliser le film de mélange des deux polymères, nous avons dissout un morceau de 2,29 gr de PMMA et un morceau de 0,57gr de SAN, soit un pourcentage de 20% de SAN pour 80% de

PMMA, dans l'acétone et nous avons étalé la solution obtenue sur un disque en verre. Après évaporation de l'acétone, nous avons obtenu un film de copolymère.

#### III.4.2. Résine époxyde

Pour préparer ce polymère, nous avons mélangé une résine liquide avec 50% de durcisseur. Un agitateur électrique est utilisé pendant les premières minutes afin d'assurer une homogénéité du mélange. Ensuite, nous avons coulé le produit obtenu dans un moule de 3mm d'épaisseur (figure III.10). Après solidification complète du mélange (au bout de deux jours), nous avons obtenu une plaque de forme parallélépipédique à partir de laquelle nous avons découpé des échantillons carrés de 4cm de côté.

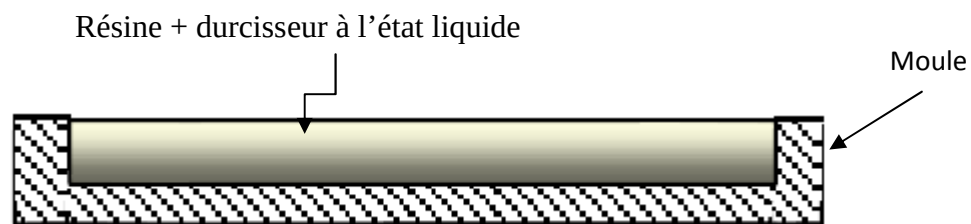


Fig.III.10.Mode de préparation des échantillons de résine époxy.

### III.5.Appareils d'analyses

#### III.5.1. Microscope électronique à balayage

Le microscope électronique à balayage (MEB) ou SEM (scanning electron microscopy en anglais) utilise une technique de microscopie basée sur le principe des interactions électrons-matière. Un faisceau d'électrons balaie la surface de l'échantillon à analyser qui, en réponse, réémet certaines particules. Différents détecteurs permettent d'analyser ces particules et de reconstruire une image de la surface.

Le MEB utilisé dans notre cas est du type environnemental (ESEM) de marque Philips JOËL XL30 à filament de tungstène (figure III.11) qui fonctionne à des tensions d'accélération du faisceau électronique, pouvant varier de 0.2 à 30 kV. Il permet d'observer des échantillons isolants sans préparation et est adapté à l'étude des échantillons biologiques d'où l'appellation « environnemental ».

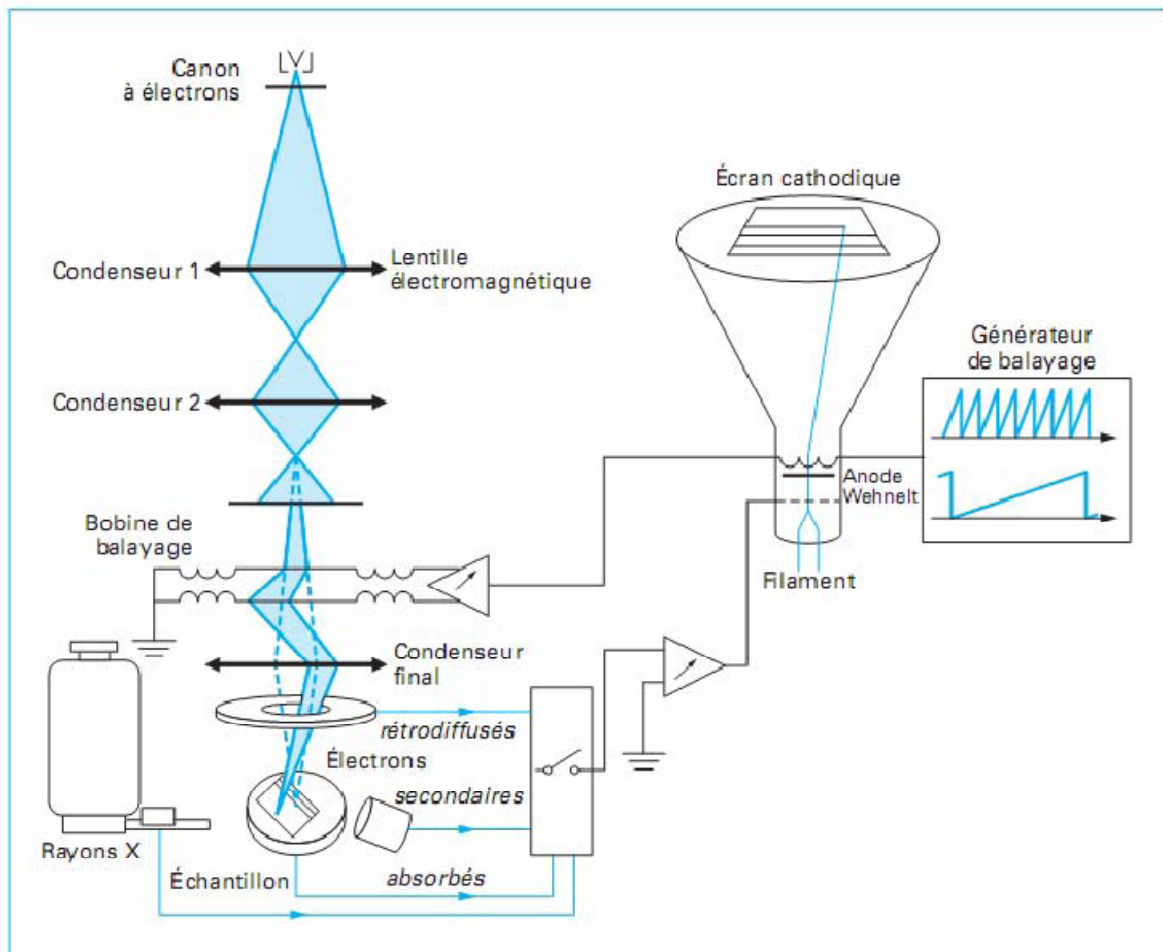


**Fig.III.11.** Photographie du microscope électronique à balayage ESEM XL 30 Philips

➤ **Constitution d'un microscope électronique à balayage (MEB)**

Comme le montre la figure III.12, le microscope électronique à balayage (MEB) est constitué de :

- Une colonne maintenue sous vide ;
- Une source d'électrons ;
- Un dispositif haute tension pour l'accélération des électrons ;
- Un ensemble de lentilles électroniques pour former le pinceau fin et intense ;
- Un condenseur final (objectif) et un diaphragme de petit diamètre qui permet de focaliser le pinceau fin sur la surface à examiner ;
- Un dispositif de réflexion piloté par un générateur de balayage ;
- Un platine porte objet mobile ;
- Un détecteur d'électrons et un dispositif d'amplification du signal rapide et à faible bruit ;
- Un système de visualisation d'image ;
- Un détecteur d'électrons rétro diffusés et un détecteur de rayons X.



**Fig. III.12.** Schéma de principe d'un microscope électronique à balayage (MEB) [83].

### ➤ Principe de fonctionnement du MEB

Un canon à électrons envoie un faisceau d'électrons sur l'échantillon. En contact avec la matière, ces électrons interagissent de différentes façons. Ils peuvent se produire par effet thermoélectronique à partir d'un filament ayant une forme d'épingle à cheveux, pour localiser l'émission par effet de pointe afin d'obtenir une source plus ponctuelle et plus brillante.

Les terres rares, en particulier l'hexa borure de Lanthane ( $\text{LaB}_6$ ), remplacent souvent les filaments de Tungstène car ils possèdent des caractéristiques thermoélectroniques assez bonnes et une pression de vapeur suffisamment faible.

Dans les instruments les plus récents, les électrons sont émis par effet de champ : on utilise une pointe métallique très aiguë, dont l'extrémité ne comporte qu'un ou quelques atomes. Le champ électrique local extrêmement intense (lié à l'inverse du rayon de courbure), est suffisant pour extraire les électrons, avec un fort rendement, à partir d'une surface très faible.

Les électrons qui sont produits par les deux méthodes (le filament de tungstène ou la pointe métallique), sont accélérés par une différence de potentiel produite par une source

haute tension continue, constituée d'un transformateur et d'un redresseur. Les tensions d'accélération classique (10 à 50 kV) fixent l'énergie des électrons qui forment un faisceau presque monocinétique.

Pour dévier la trajectoire d'un électron en mouvement, on utilise habituellement dans le microscope électronique des bobines magnétiques pour réduire l'accélération.

Le contrôle du balayage de la surface de l'échantillon est assuré par des bobines de déflexion, alimentées par une source électrique délivrant un courant en dents de scie (déviations en x) et un courant en escalier (déviations en y).

Un oscilloscope cathodique est synchronisé avec ce balayage : on applique un courant provenant de la même source aux bobines de déflexion de la colonne et de l'oscilloscope.

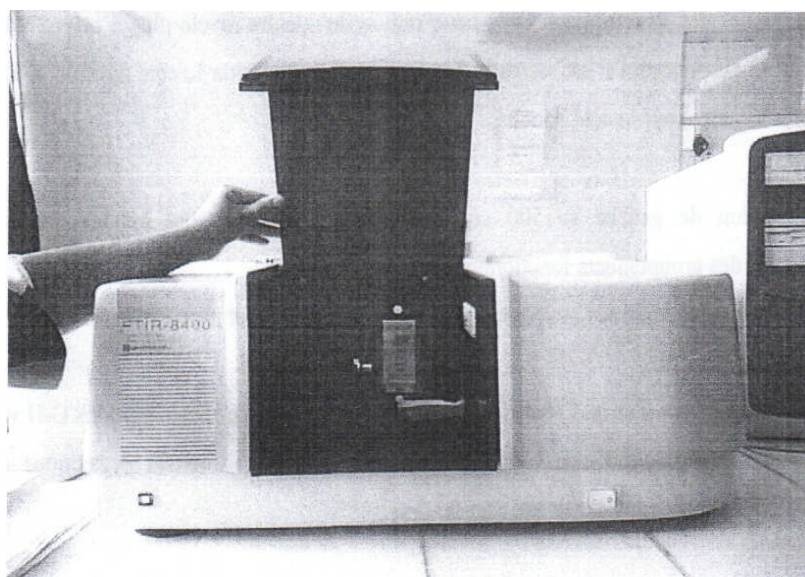
Une bobine finale permet de contrôler la conicité du faisceau d'électrons afin de la focaliser exactement sur la surface de l'échantillon. Pour corriger l'astigmatisme ou les aberrations, on trouve des bobines supplémentaires.

Le faisceau d'électrons qui vient du canon à électrons est appelé faisceau d'électrons primaires.

### III.5.2. Dispositif d'analyse aux rayons infrarouges

La Spectroscopie Infrarouge à Transformée de Fourier (ou FTIR : Fourier Transformed InfraRed spectroscopy) est basée sur l'absorption d'un rayonnement infrarouge par le matériau analysé. Elle permet d'effectuer l'analyse des fonctions chimiques présentes dans un matériau.

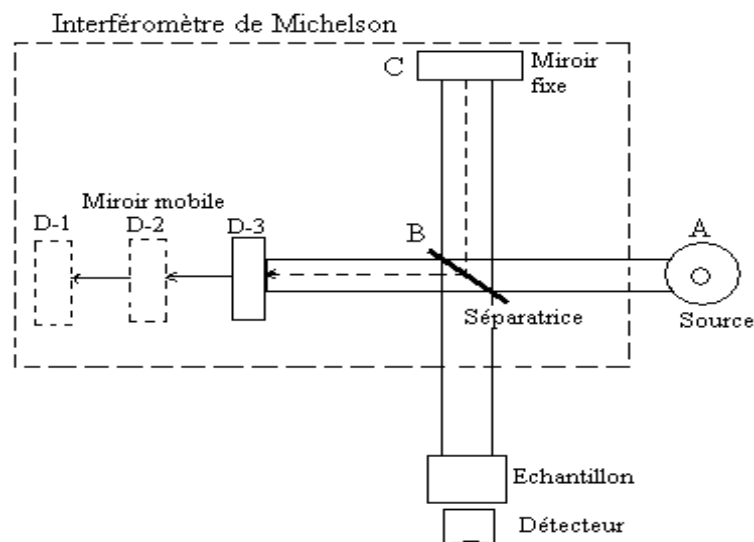
L'analyse FTIR de nos échantillons a été faite à l'aide d'un appareil de type Shimadzu 8400 (figure III.13).



**Fig. III.13.** FTIR-Shimadzu 8400

### ➤ Principe de fonctionnement d'un spectromètre à transformée de Fourier

A un matériau de composition et de structure chimique donnée, correspond un ensemble de bandes d'absorption caractéristiques permettant d'identifier le matériau. Le spectromètre (figure III.14) envoie un rayonnement infrarouge et mesure les longueurs d'onde auxquelles le matériau absorbe. Le faisceau infrarouge provenant de la source A et dont l'atténuation est en fonction de la longueur d'onde, de la fréquence ou du nombre d'onde, est dirigé vers l'interféromètre de Michelson qui modulera chaque longueur d'onde du faisceau à une fréquence différente [83]. Dans l'interféromètre, le faisceau lumineux arrive sur la séparatrice. La moitié du faisceau est alors dirigée vers le miroir fixe, le reste passe à travers la séparatrice et est dirigé vers le miroir mobile. Quand les deux faisceaux se recombinent, les interférences destructives ou constructives apparaissent en fonction de la position du miroir mobile. Le faisceau modulé est alors réfléchi des deux miroirs vers l'échantillon où les absorptions interviennent. Le faisceau arrive ensuite sur le détecteur pour être transformé en signal électrique.



**Fig. III.14.** Schéma d'un spectromètre à transformée de Fourier [84].

#### III.5.3. Dispositif d'analyse par la spectroscopie d'impédance (RLC mètre)

La spectroscopie diélectrique est basée sur la mesure de deux propriétés fondamentales du matériau qui sont sa conductivité et sa capacité, en fonction du temps et de la fréquence. L'application la plus répandue dans le domaine de l'isolation électrique est la détermination du facteur de pertes diélectriques. Cette technique permet également de révéler les processus de relaxation des dipôles, des molécules et des macromolécules au sein de nombreux types de matériaux diélectriques (céramiques, polymères, liquides...etc.) et de fournir des informations sur la structure du matériau. Cette technique non destructive peut être appliquée directement à des systèmes d'isolation [85]. La fréquence de la tension alternative appliquée est typiquement entre quelques kHz à quelques dizaines de MHz [86].



Les propriétés diélectriques des échantillons de polymère sont mesurées et étudiées à l'aide d'un impédance-mètre (type GWInstek-LCR 817) donné par la figure III.15. Les valeurs de mesure sont prises pour des fréquences allant de 0.5 kHz à 10 kHz avec un pas de 0.5 kHz.



**Figure III.15 :** Impédance-mètre GwInstek LCR-817.

### III.6.Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté les dispositifs expérimentaux, la procédure suivie pour préparer nos échantillons et les différents équipements utilisés dans nos investigations expérimentales, à savoir la chaine constituant le dispositif expérimental et les appareils d'analyse entre autres le microscope électronique à balayage, le dispositif d'analyse aux rayons infrarouges et le dispositif d'analyse par la spectroscopie d'impédance.



## **CHAPITRE IV**

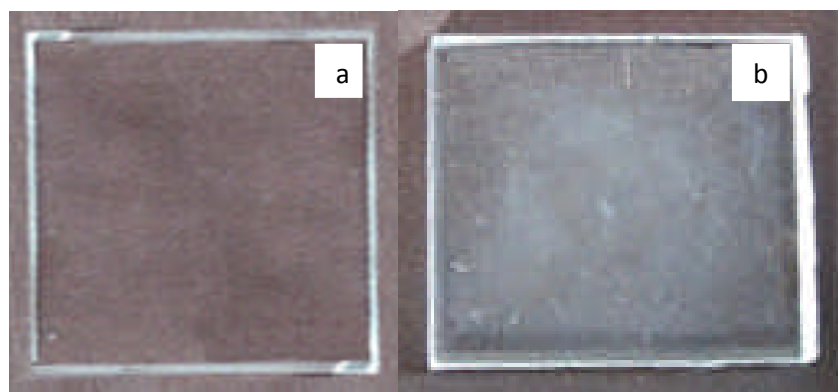
### **APPLICATIONS : ETUDE DU COMPORTEMENT PHYSICOCHEMIQUE DU PMMA SOUMIS A UNE DECHARGE COURONNE**

L'objet principal de ce chapitre est de dégager, à partir d'une étude utilisant des analyses MEB, EDX (Energy Dispersive X-ray), AFM et FTIR, les résultats les plus marquants, relatifs aux effets de la décharge sur une isolation en PMMA. La mesure des courants de déplacement et de fuite associés à la décharge piégée fera l'objet d'une partie de ce chapitre. Nous proposons également le dopage du PMMA avec du SAN afin d'évaluer les propriétés du mélange SAN/PMMA. Le schéma du dispositif expérimental utilisé pour générer la décharge couronne est donné par la figure III.1. L'échantillon de PMMA, placé en série avec un intervalle d'air de 3 mm, est soumis à des décharges dans un système sphère-plan. Une tension de 15 kV est appliquée à l'électrode haute tension en forme de sphère, l'électrode plane étant mise à la terre. L'échantillon SAN/PMMA quant à lui est soumis à une tension de 12 kV. La décharge obtenue est caractérisée par la formation de canaux qui prennent naissance au niveau de l'électrode haute tension pour atteindre la surface de l'échantillon.

### IV.1. Observation visuelle des échantillons

L'observation des éprouvettes nous permet de constater un changement de couleur à la surface, suite à un phénomène d'évolution morphologique. Cette nouvelle couleur, blanchâtre, justifie la modification de la structure chimique du matériau isolant et donc sa dégradation sous l'influence de la décharge électrique.

Il est à noter que ce changement de couleur touche seulement la zone touchée par la décharge électrique. La partie non traitée reste transparente (Figure IV.1).



**Fig.IV.1.** Observation visuelle des échantillons :  
a. Vierge ; b. vieilli pendant 1h sous 15kV.

### IV.2. Résultats d'analyses

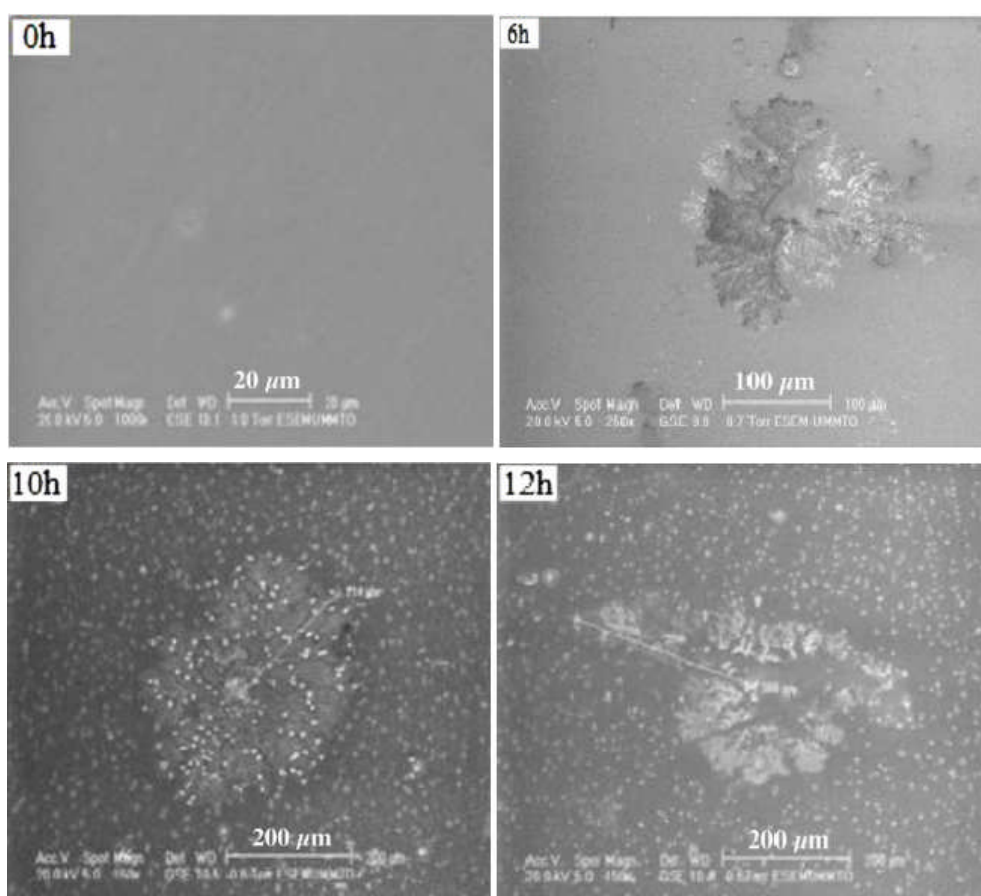
#### IV.2.1. Etude morphologique et structurale de surface

##### IV. 2.1.1. Analyse au microscope électronique à balayage (MEB)

Dans le but d'analyser la topographie de la surface des échantillons de PMMA soumis aux décharges couronne, nous les avons analysés à l'aide d'un microscope électronique à balayage (MEB).

La figure IV.2 montre les micrographies d'échantillons de PMMA soumis aux décharges électriques. L'échantillon vierge présente une surface lisse, homogène exempte de toute dégradation. Pour les échantillons soumis aux décharges couronne pendant 6h, 10h et 12h, nous pouvons observer, la topographie des zones ayant subi des dégradations.

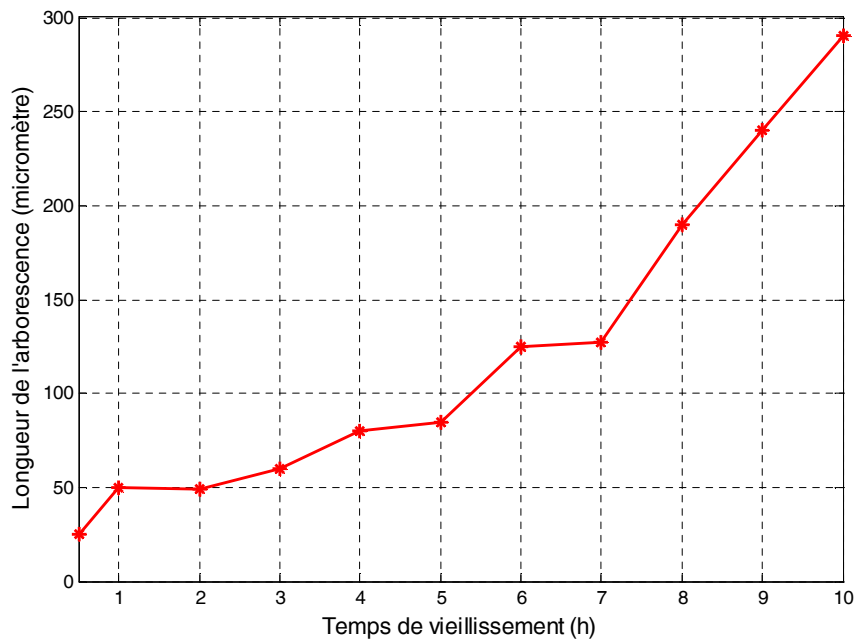
Après vieillissement électrique, la surface du polymère s'est dégradée et un changement de couleur est constaté au niveau des régions soumises aux décharges électriques. Des arborescences dont la longueur augmente avec l'augmentation du temps de vieillissement prennent naissance.



**Fig.IV.2.** Micrographie MEB des échantillons en PMMA vierge, et vieillissés sous décharge couronne respectivement durant 6h, 10h et 12h.

#### IV. 2.1.1.1. Influence du temps de vieillissement sur la longueur finale des arborescences

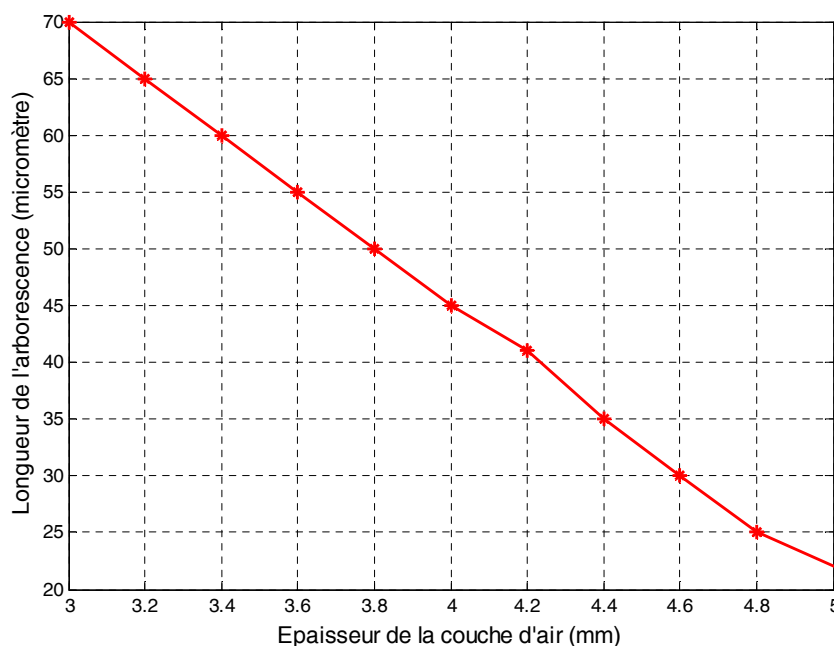
La figure IV.3 nous donne la variation de la longueur des arborescences en fonction du temps de vieillissement. Nous avons mesuré la longueur de la plus grande arborescence pour des durées de vieillissement différentes. La courbe montre que cette longueur augmente avec la durée de vieillissement sous décharge couronne, elle passe de 50µm à 290µm lorsque le temps de vieillissement passe de 2h à 10h.



**Fig. IV.3.** Variation de la longueur finale des arborescences en fonction du temps de vieillissement du PMMA

#### IV.2.1.1.2. Influence de l'épaisseur de la couche d'air sur la longueur finale des arborescences

La courbe donnant la variation de la longueur des arborescences en fonction de l'épaisseur de la couche d'air, séparant l'électrode HT de la surface de l'isolant, est donnée par la figure IV.4. Elle montre que la longueur maximale des arborescences diminue avec l'augmentation de l'intervalle d'air.



**Fig. IV.5.** Influence de l'intervalle d'air sur la longueur des arborescences pour le PMMA.

#### IV.2.1.2. Analyse par diffraction des rayons X

L'analyse EDX permet de connaître la composition élémentaire qualitative et/ou quantitative d'un échantillon, à partir de la mesure par une diode Si(Li), des énergies des photons X émis à partir de la région de l'échantillon bombardée par un faisceau d'électrons.

Equipé en microanalyse X (EDX), le MEB permet une détection des raies caractéristiques X des éléments présents dans l'échantillon. L'analyse des échantillons est réalisée à base d'une résolution spatiale de l'ordre de  $1\text{mm}^3$ .

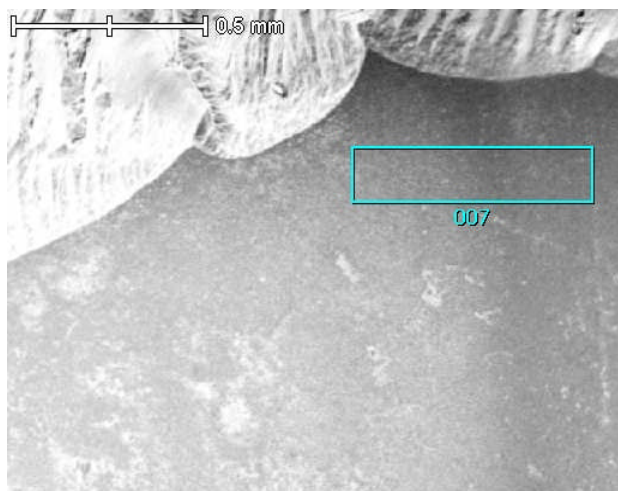
Les Figures IV.5 et IV.6 représentent les résultats des analyses de deux échantillons ayant une épaisseur de 3 mm chacun, soumis à une décharge, pendant 6h pour le premier et 8 h pour le deuxième. Nous avons réalisé des caractérisations chimiques qui permettent de quantifier les teneurs en carbone (C) et en oxygène (O).

Les figures IV.5(b) et IV.6(b) montrent clairement que le vieillissement des échantillons engendre l'augmentation du taux de carbone et la diminution du taux d'oxygène.

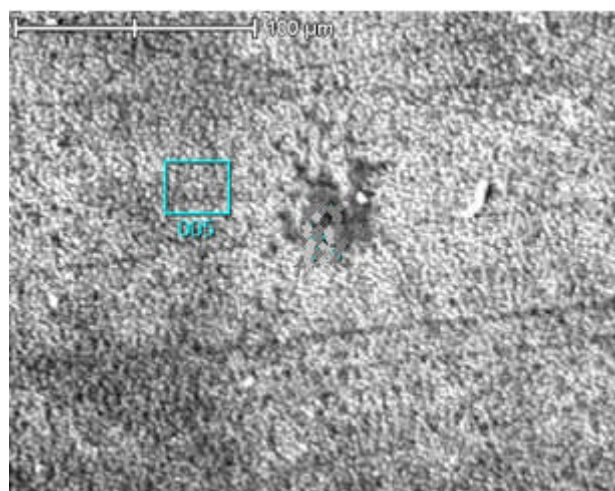
L'échantillon de PMMA vieilli pendant 6heures a subi une dégradation qui se manifeste par le passage du taux de carbone de 63.9% pour la zone non vieillée à 85.52% pour la zone vieillée. Le taux d'oxygène passe de 36.1% (zone non vieillée) à 14.48% (zone vieillée).

La figure IV.6 confirme les résultats de la figure IV.5. En effet, on remarque l'augmentation du taux de carbone et la diminution du taux d'oxygène pour la zone vieillée en comparaison avec la zone non vieillée.

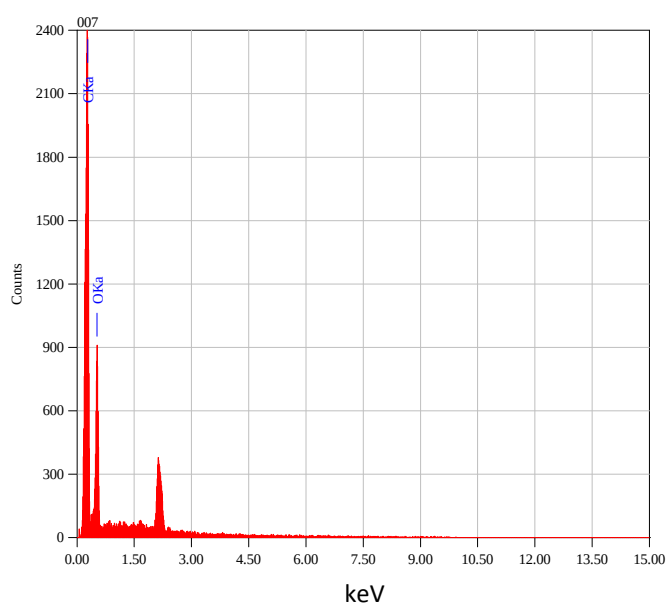
Le taux d'augmentation du carbone, et donc celui de diminution d'oxygène, varie d'un échantillon à un autre. Pour le premier échantillon ce taux est de 21.62% et il est de 7.49% pour le deuxième. Le pourcentage du premier échantillon est plus important, ce qui pourrait être dû à l'apparition des décharges glissantes à la surface de l'échantillon.



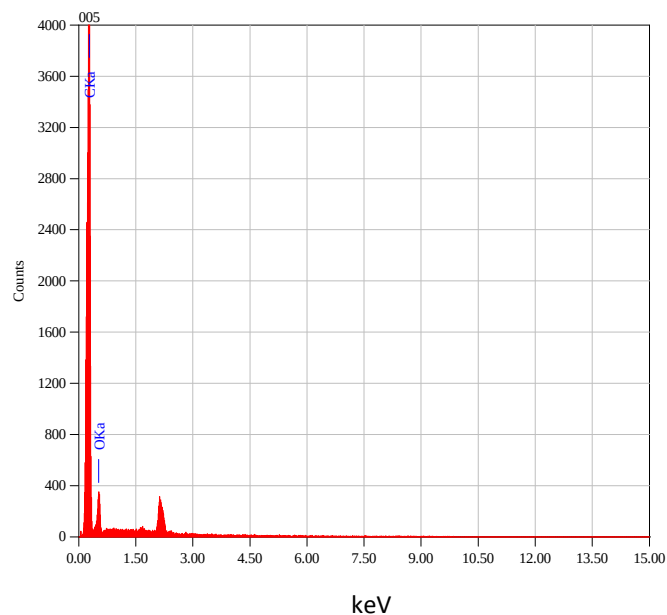
a. Zone non vieillie



zone vieillie

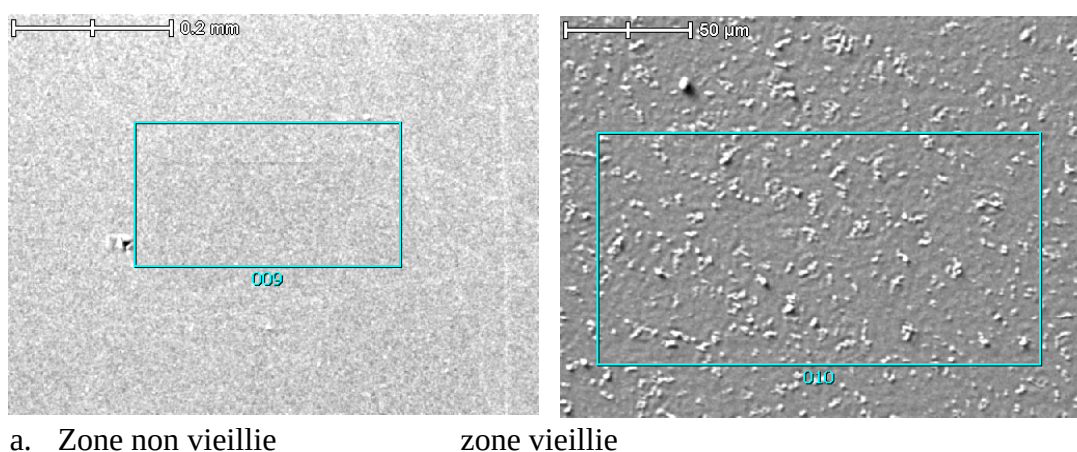


b. zone non vieillie C=63.90% at  
O=36.10% at



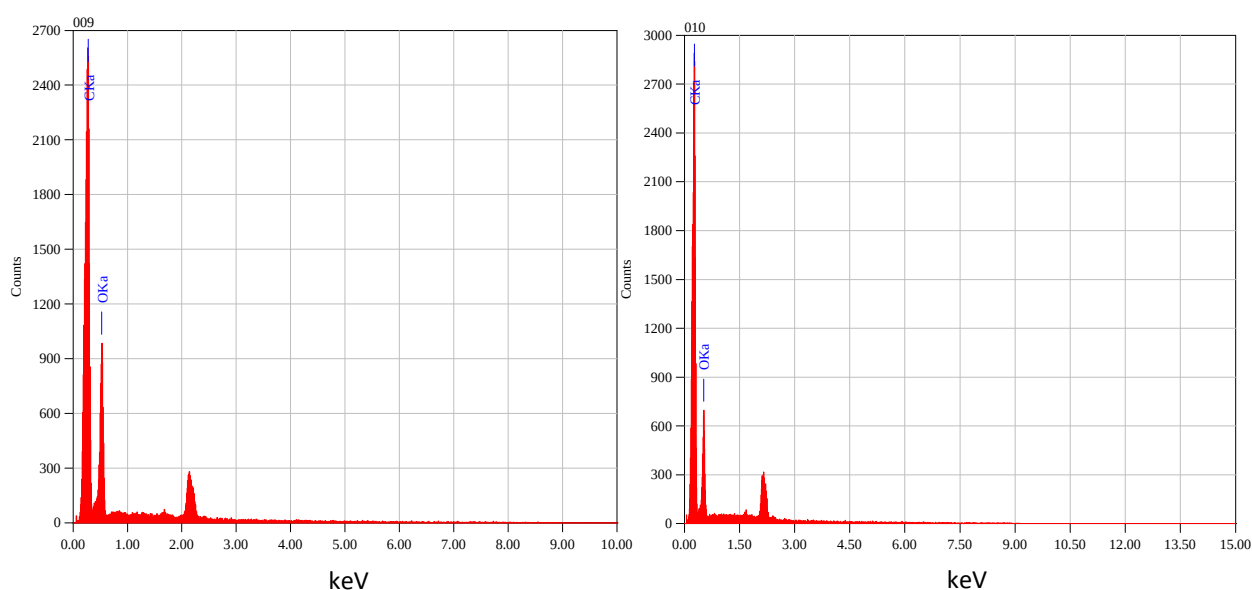
zone vieillie C=85.52% at  
O=14.48% at

**Fig. IV.5.** Micrographies MEB (a) et microanalyses X (b) de PMMA sec vieilli sous décharge couronne durant 6h.



a. Zone non vieillie

zone vieillie



b. zone non vieillie C=63.75%

zone vieillie C= 71.24%

O=36.24%

O=28.76%

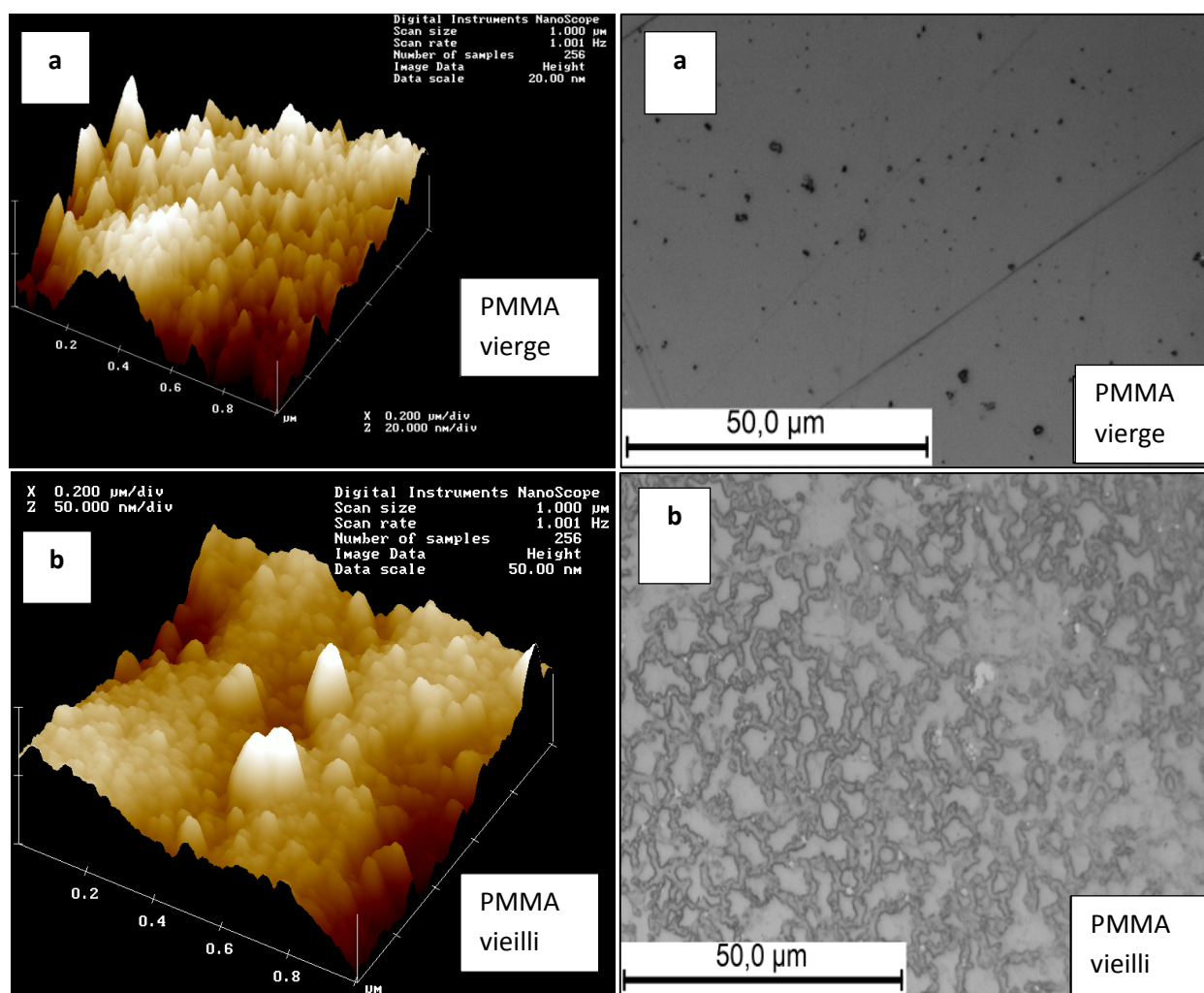
**Fig. IV.6.** Micrographies MEB (a) et Microanalyses X (b) de PMMA sec vieilli sous décharge couronne durant 8h.

#### IV.2.1.3. Analyse au microscope à force atomique

Le changement de rugosité de la surface du PMMA dû au vieillissement électrique est mis en évidence par microscopie à force atomique (AFM), en utilisant un Veeconanoscope III en mode sans contact et un microscope optique LeicaReichert MEF4M en mode réflexion. Les photographies de la surface du polymère et des profils de surface ont été analysées pour deux types d'échantillons (échantillons de forme circulaire avec 3mm d'épaisseur et 30 mm de diamètre) : le premier est vierge et le deuxième vieilli sous décharge couronne pendant 6heures de temps. L'aspect de la surface du PMMA vierge (figure IV.7.a) et celui du PMMA vieilli (figure IV.7.b) sont indiqués sur les profils de surface AFM et sur les images optiques.



Nous observons un changement d'aspect et une augmentation de la rugosité de surface due au vieillissement électrique. La différence de profondeur moyenne passe d'environ 50nm pour un échantillon non vieilli à 100nm pour un échantillon vieilli.



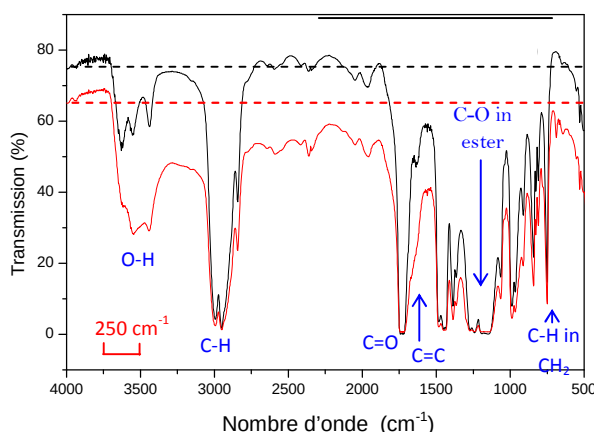
**Fig. IV.7.** Micrographie AFM du PMMA vierge (a) et vieilli sous décharge couronne pendant 6 heures (b).

#### IV.2.1.4. Analyse par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier FTIR

##### IV.2.1.4.1. Spectres d'absorption

Dans le but d'effectuer une étude comparative entre un échantillon de PMMA vierge et un autre échantillon vieilli sous décharges électriques, nous avons placé notre échantillon en film en série avec un intervalle d'air de 3 mm, dans un système sphère-plan. Une tension de 12 kV est appliquée à l'électrode haute tension en forme de sphère. Nous avons comparé les deux spectres relatifs aux deux échantillons, vierge et vieilli sous décharges couronne pendant 6 heures de temps, les résultats sont donnés par la figure IV.8.





**Fig. IV.8.** Spectre FTIR du PMMA vierge (courbe en noir) et vieilli sous décharge couronne durant 6h (courbe en rouge). Les lignes en pointillé représentent les lignes de base pour le calcul des valeurs de l'intensité des pics.

Les nombres d'onde ainsi que les groupes fonctionnels correspondant aux pics principaux ou bandes d'absorption sont donnés dans le tableau IV.1.

L'analyse des spectres FTIR de la figure IV.8 montre que le taux de transmission a diminué après vieillissement électrique. Cela est dû à la dégradation de la surface du PMMA.

La bande d'absorption  $3200-3600\text{ cm}^{-1}$  des spectres représentés par la figure IV.9 est attribuée aux groupements libres OH et les OH des molécules d'eau. On remarque que les pics appartenant à la bande d'absorption  $2850-3000\text{ cm}^{-1}$  et aux alentours de  $1400\text{ cm}^{-1}$ , affectés aux liaisons CH, diminuent après le vieillissement, tandis que le pic appartenant à  $730\text{ cm}^{-1}$  et qui est attribué aux groupements CH de  $\text{CH}_2$  reste constant. Ceci peut être expliqué par le fait que des atomes d'hydrogène pourraient être extraits des groupements méthyle  $\text{CH}_3$  en raison de l'irradiation UV comme le montre la réaction de la figure IV.14. On observe également une diminution, après vieillissement électrique, de l'intensité du pic d'absorption à  $1750\text{ cm}^{-1}$  qui correspond à la liaison  $\text{C}=\text{O}$  et l'apparition d'un pic à  $1650\text{ cm}^{-1}$  associé à une liaison  $\text{C}=\text{C}$ . La liaison  $\text{C}-\text{O}$  à  $1210-1260\text{ cm}^{-1}$  attribuée aux groupements ester, diminue après le vieillissement sous décharge couronne, ceci suggère qu'une partie de ces groupements disparaît pour donner naissance à de nouveaux radicaux.

**Tableau IV.1.** Nombre d'onde des principaux pics ou bandes et leurs groupements fonctionnels. Comparaison des intensités des pics du PMMA vierge et du PMMA vieilli.

| Nombre d'onde<br>(cm <sup>-1</sup> ) | Groupes<br>fonctionnels                        | Intensité relative<br>maximum du pic |                      | Comportement |
|--------------------------------------|------------------------------------------------|--------------------------------------|----------------------|--------------|
|                                      |                                                | PMMA<br>vierge                       | PMMA<br>vieilli (6h) |              |
| 3200-3600                            | OH libre<br><br>OH avec liaison<br>d'hydrogène | 0.26                                 | 0.49                 | augmentation |
| 2850-3000                            | CH                                             | 0.97                                 | 0.84                 | diminution   |
| 1750                                 | C=O                                            | 1                                    | 0.87                 | diminution   |
| 1650                                 | C=C                                            | absence de<br>pic                    | renflement           | apparition   |
| 1210-1260                            | C-O de l'ester                                 | 0.99                                 | 0.86                 | diminution   |
| 730                                  | CH dans CH <sub>2</sub>                        | 0.80                                 | 0.77                 | constant     |

### IV.3. Mesure de résistivité

L'évolution de la résistivité de surface des échantillons de PMMA a été étudiée en se basant sur une mesure classique des caractéristiques I (V). Le dispositif expérimental est donné par la figure III.8. Une différence de potentiel de 0 à 50 V avec un pas de 0.5 V est appliquée. La résistivité de surface peut être calculée à partir de la valeur de la résistance de surface  $R_s$  obtenue en utilisant l'expression suivante [87] :

$$\rho_s = R_s \frac{2\pi}{\ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right)} \quad (\text{IV.1})$$

Où  $r_1$  et  $r_2 > r_1$  (8,03 mm et 3,32 mm dans notre cas) représentent les rayons des deux électrodes circulaires concentriques délimitant une surface  $s$  de 155 mm<sup>2</sup>. La connexion de la sonde de rayon  $r_2$  à la masse (anneau de garde) permet également de mesurer la résistivité volumique. Comme le champ électrique appliqué ne dépasse pas 2.10<sup>4</sup> V.m<sup>-1</sup>, on peut s'attendre à un mécanisme de conduction ohmique [87].

Une comparaison entre les résistivités de volume et de surface d'un échantillon de PMMA de 3 mm d'épaisseur non vieilli et de celles d'un autre vieilli pendant 6 heures a été effectuée. Comme prévu, les résistivités volumiques mesurées sont assez similaires mais les résistivités de surface mesurées sont différentes (tableau IV.2). La résistivité de surface  $\rho_s$  est plus faible pour un échantillon vieilli confirmant ainsi une augmentation de la conductivité de surface suite au vieillissement électrique.

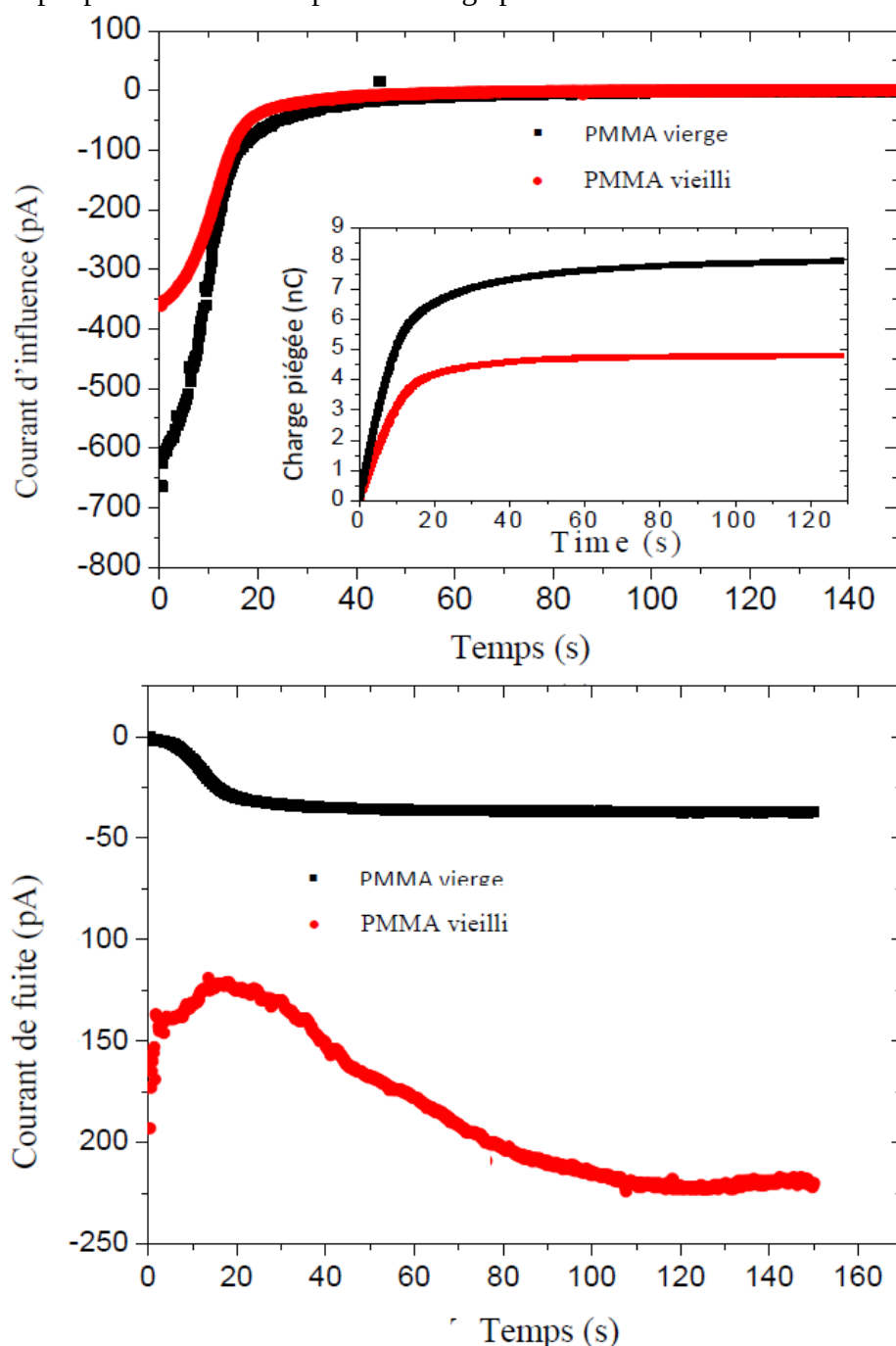
**Tableau IV.2.** Résistivité mesurée, constante de temps et la charge à la saturation des échantillons de PMMA vieilli et vierge.

|                            | Résistivité surfacique<br>$\rho_s(10^{14}\Omega)$ | Résistivité volumique<br>$\rho_v(10^{14}\Omega.\text{cm})$ | Constante de temps<br>$\tau(\text{s})$ | Charge à la saturation<br>$Q_s(\text{nC})$ |
|----------------------------|---------------------------------------------------|------------------------------------------------------------|----------------------------------------|--------------------------------------------|
| PMMA<br>Vierge             | (2.7 ± 0.2)                                       | (64 ± 3)                                                   | 10.7                                   | 8.2                                        |
| PMMA<br>Vieilli pendant 6h | (0.24±0.01)                                       | (56±3)                                                     | 9.4                                    | 4.7                                        |

#### IV.4. Phénomène de charges du PMMA soumis à une irradiation électronique

Dans cette partie, nous avons soumis des échantillons vierge et vieilli sous décharge couronne pendant 6 heures, à une irradiation par un faisceau d'électrons à 15keV et 3nA dans un dispositif se trouvant dans le MEB (figure III.9). Nous avons mesuré les courants induits (courants de fuite et d'influence) puis nous avons comparé les résultats obtenus pour les deux échantillons. L'évolution temporelle du courant d'influence et du courant de fuite est donnée

par la figure IV.9. De même l'évolution de la charge piégée au cours de la période d'irradiation électronique est donnée au-dessous de la courbe représentant le courant d'influence en fonction du temps d'irradiation. La figure montre que les courants d'influence diminuent avec le temps pour atteindre la valeur quasi nulle après 40 secondes d'irradiation, le nombre d'électrons incidents est donc égal au nombre d'électrons qui quittent l'échantillon. Aucun changement particulier de pente pour la courbe représentant le courant d'influence et de celle représentant le courant de fuite. La conduction ohmique est alors le principal processus de transport de charge pour le courant de fuite.



**Fig. IV.9.** Courants d'influence et de fuite en fonction du temps, pendant le processus de charge.

Pendant la période d'irradiation, la charge piégée obéit approximativement à une cinétique de premier ordre telle que [88] :

$$Q=Q_s (1- e^{-t/\tau})(IV.13) \quad (IV.2)$$

Où  $Q_s$  représente la quantité de charge piégée à l'état d'équilibre et  $\tau$  la constante de temps de charge. Les valeurs de ces deux paramètres sont données dans le tableau IV.2. On remarque que  $Q_s$  diminue avec le temps de vieillissement à cause de l'augmentation de la conductivité de surface du PMMA.

## IV.5. Comportement du PMMA dopé avec du SAN

Nous avons élaboré un film de copolymère en dopant le polymère étudié (PMMA) avec un autre polymère appelé SAN (styrène acrylonitrile). Le film obtenu est soumis à des décharges électriques sous une tension de 12 kV, afin d'étudier sa structure et ses propriétés avant et après le vieillissement et faire une comparaison avec le PMMA pur.

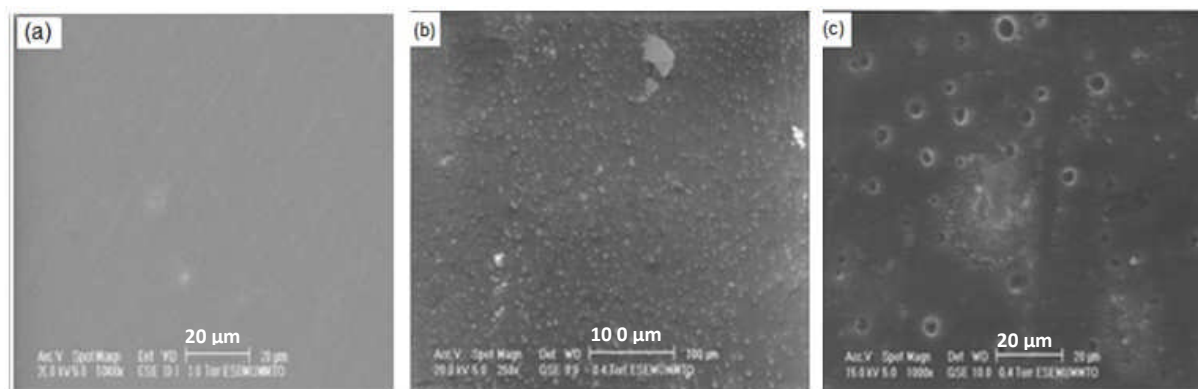
### IV.5.1. Etude comparative PMMA/copolymère

Une amélioration ou non de la structure et des propriétés du PMMA après son mélange avec du SAN nécessite une analyse à l'échelle microscopique des deux diélectriques. Nous avons réalisé deux analyses : une analyse MEB et une analyse FTIR.

#### ➤ Analyse (MEB)

En vue de comparer les deux structures du polyméthacrylate de méthyle, avant et après son dopage avec du SAN, une observation au microscope électronique à balayage (MEB) a été réalisée.

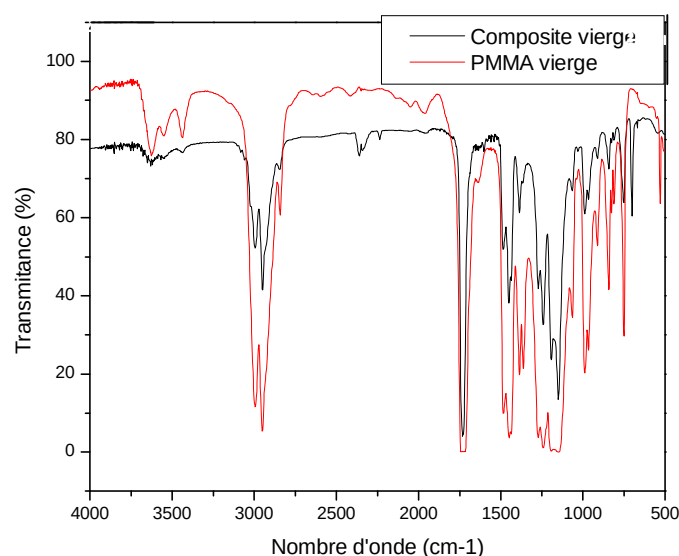
Les micrographies (a) et (b) de la figure IV.10montrent, respectivement, les surfaces d'échantillons de films de PMMA vierge et du mélange SAN/PMMA vierge avec un agrandissement de 250x. La micrographie (c) montre l'échantillon du copolymère avec un agrandissement 1000x. L'échantillon (a) présente une surface lisse et homogène par contre, la surface du copolymère est non homogène et présente des formes circulaires réparties le long de la surface de l'échantillon (b). L'agrandissement 1000x (c) nous permet de voir clairement la répartition de ces formes circulaires.



**Fig.IV.10.** Micrographie MEB du PMMA vierge (a) ; SAN/PMMA vierge avec un agrandissement de 250x (b) et SAN/PMMA vierge avec un agrandissement de 1000x (c).

#### ➤ Analyse FTIR

La figure IV.11 nous donne le spectre FTIR du PMMA et celui du composite SAN/PMMA non soumis aux décharges électriques. Elle montre bien une différence dans la composition chimique du PMMA avant et après son mélange avec le styrène acrylonitrile. Nous remarquons l'atténuation des pics associés à  $1750\text{ cm}^{-1}$ ,  $1500\text{ cm}^{-1}$  et  $1375\text{ cm}^{-1}$  ainsi que dans la bande allant de  $1000\text{ cm}^{-1}$  à  $500\text{ cm}^{-1}$ . Nous enregistrons également l'apparition de pics, ne figurant pas dans le spectre correspondant au PMMA, dans la plage allant de  $1250\text{ cm}^{-1}$  à  $1125\text{ cm}^{-1}$  et qui correspondent aux groupements C-N.



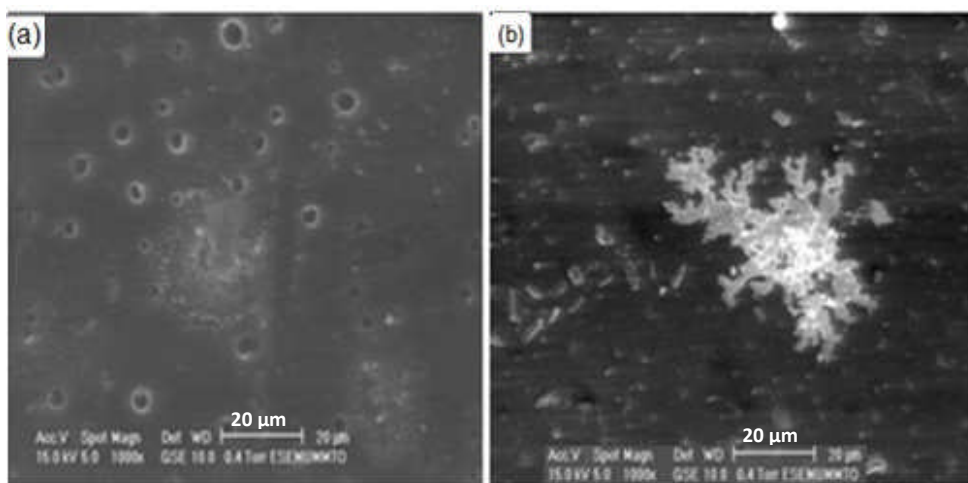
**Fig. IV.11.** Spectre du SAN/PMMA et PMMA vierge

### IV.5.2.Effet de la décharge couronne sur le comportement du copolymère

#### ➤ Analyse MEB

La figure IV.12 met en évidence l'effet de la décharge couronne sur l'état de surface du copolymère SAN/PMMA. Elle montre qu'après vieillissement électrique, la surface de

l'échantillon s'est dégradée et un changement de couleur est constaté au niveau de la région soumise aux décharges électriques. Après un vieillissement de 30min, des arborescences ont pris naissance à la surface du film exposé aux décharges électriques.

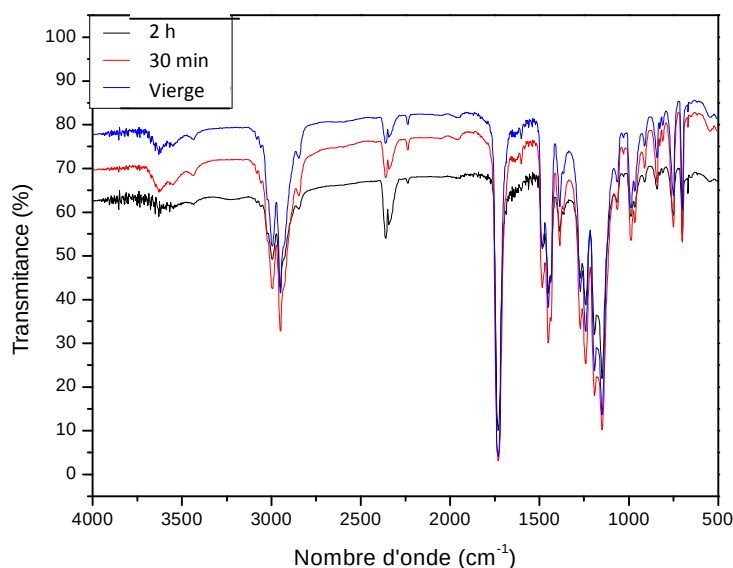


**Fig.IV.12.** Micrographies MEB du SAN/PMMA vierge (a) et vieilli sous décharge couronne pendant 30 min (b).

#### ➤ Analyse FTIR

Afin d'identifier les différentes modifications dans la structure et la composition du copolymère après un vieillissement électrique, une spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) est menée sur un échantillon vierge et des échantillons vieillis. La figure IV.13 montre qu'après 30 min de vieillissement, l'échantillon a subi une dégradation qui se traduit par la diminution de la transmittance, mais la forme du spectre est restée inchangée.

Dans le but de mettre en évidence l'influence du temps de vieillissement sur les propriétés du copolymère, nous avons augmenté la durée de vieillissement à deux heures de temps puis nous avons comparé le spectre obtenu avec celui de l'échantillon vieilli pendant 30 minutes (figure IV.13). Les résultats montrent bien que le taux de transmission a diminué en passant du spectre de l'échantillon de copolymère vierge à celui de l'échantillon vieilli sous décharge électrique durant 30 min puis à celui vieilli pendant 2h. Ceci explique une dégradation progressive avec le temps de vieillissement du matériau soumis à l'action de la décharge couronne.



**Fig. IV.13.** Spectre du SAN/PMMA vierge et vieilli pendant 30min et 2h

Le spectre correspondant au vieillissement de 2h montre que l'échantillon a subi une transformation importante qui se traduit par la diminution du taux de transmittance et une diminution de l'intensité des pics d'absorption des liaisons C-H, dans la bande de fréquences  $2250\text{cm}^{-1}$ - $3000\text{cm}^{-1}$  et des liaisons C-O dans l'intervalle  $1000\text{cm}^{-1}$ - $1500\text{cm}^{-1}$  et C-N dans l'intervalle  $500\text{cm}^{-1}$ - $1000\text{cm}^{-1}$ , indiquant ainsi une réduction des groupements fonctionnels, donc une dégradation du diélectrique.

Après 2h d'exposition aux décharges électriques, nous avons enregistré la diminution d'un faible pic à  $2250\text{cm}^{-1}$  qui correspond à la rupture d'une triple liaison CN.

## IV.6. Discussion des résultats d'analyses

### IV.6.1. Evolution morphologique avec le vieillissement électrique de la surface du PMMA

Les analyses MEB des échantillons de PMMA ont montré l'apparition de quelques taches blanchâtres, ce qui pourrait correspondre à des gravures thermiques par où s'échappe les gaz [89]. Ces taches sont caractéristiques d'une dégradation avancée de la surface du PMMA. En d'autres termes, cette dégradation est une première usure de la surface due à une augmentation de la température suite au rythme élevé de répétition de la décharge. Cette première dégradation est suivie de la formation de fissures et de cratères peu profonds [90, 91]. Un autre phénomène est observé, c'est le développement d'arborescences à la surface des échantillons vieillis sous décharges électriques. Ces arborescences sont liées à l'humidité absorbée par l'échantillon avant l'essai de vieillissement [92]. On pourrait penser qu'elles sont dues aux charges injectées et piégées dans le matériau sous irradiation



électronique dans le MEB car ces charges accumulées conduisent généralement à une dégradation de la surface, résultant de la relaxation de l'énergie stockée [89]. Cependant, comme nous travaillons en mode environnemental, le potentiel de surface de l'isolant est proche de zéro et aucun effet d'amorçage, déclenché par la charge piégée à l'interface diélectrique-gaz, ne peut être produit. Finalement, les arborescences résultent seulement du vieillissement sous décharge couronne [93,3]. En effet, lorsque la décharge couronne se produit, l'énergie des électrons entrants dépassant 10eV provoque la rupture des liaisons moléculaires à la surface du solide et la formation d'ozone O<sub>3</sub> dans l'espace inter électrode entre l'électrode de forme sphérique et la surface du PMMA. Par conséquent, un canal peut se développer dans le matériau à partir de points situés à la surface du PMMA [90,91] suivi d'une arborescence qui se propage à la surface de l'échantillon et non dans son volume.

Le changement de rugosité observé lors des analyses AFM présente un impact direct sur les propriétés de surface, en particulier sur la mouillabilité des échantillons [3]. En effet, tous les défauts macroscopiques créés par décharge couronne ont une origine microscopique qui est le résultat d'une rupture de liaisons au niveau des chaînes constituant le polymère, ce qui conduit à la création de radicaux libres.

#### IV.6.2. Transformation chimique

Les résultats des analyses FTIR et EDX ont montré que le polymère avait subi des déformations favorisant le transport des porteurs de charges. Nous avons constaté une rupture de quelques liaisons CH après le vieillissement du PMMA. Ceci pourrait être expliqué par le fait que des atomes d'hydrogène peuvent être extraits des groupements méthyle CH<sub>3</sub> en raison de l'irradiation UV comme le montre la réaction de la figure IV.14.

Nous avons observé également une diminution, après vieillissement électrique, de l'intensité du pic d'absorption à 1750 cm<sup>-1</sup> qui correspond à la liaison C=O et l'apparition d'un pic à 1650 cm<sup>-1</sup> associé à une liaison C=C.

La diminution de la liaison C-O, quant à elle, suggère qu'une partie de ces groupements disparaît pour donner naissance à de nouveaux radicaux. En effet, il est bien connu qu'un rayonnement UV avec une énergie suffisante émise par le polymère peut conduire à la rupture de la liaison C-O du groupe ester ayant une énergie de liaison d'environ 13eV [94]. Cependant, dans notre cas, l'énergie des photons UV émis lors de la décharge dépasse à peine 10 eV. La rupture peut ainsi se produire à cause de l'irradiation d'ions ou d'électrons, produits sous décharge couronne, avec une énergie supérieure à 100 eV [95].

L'extraction des groupes O-CH<sub>3</sub> de la fonction ester laisse derrière un radical réactif dans la chaîne du polymère. Sous l'effet de l'ozone et de l'humidité ambiante (on sait que le PMMA est un matériau polaire qui présente une sensibilité évidente à l'humidité), un groupe carboxyle (COOH) s'attache à la nouvelle structure du polymère comme le montre la figure IV.14 (étape2). En effet, l'ozone généré par la décharge en présence de l'eau donne la réaction (IV.3) suivante :

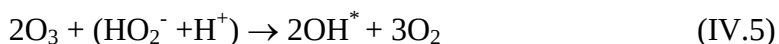


Cette réaction, qui se produit en présence d'une irradiation UV générée par la décharge, produit du peroxyde d'hydrogène et de l'oxygène. Par la suite, l'ozone est combiné avec du peroxyde d'hydrogène selon le mécanisme suivant [96] :

- Le peroxyde d'hydrogène se divise dans l'eau comme suit :



- Les ions résultants réagissent avec l'ozone pour donner des radicaux  $\text{OH}^*$ .



En raison de son très haut potentiel électronique, le radical  $\text{OH}^*$  se lie au groupe carbonyle  $\text{C}=\text{O}$  et donne naissance à un groupement carboxyle  $\text{COOH}$  [10]. Le radical  $\text{O}-\text{CH}_3$  devient, dans l'humidité ambiante, du méthanol gazeux  $\text{CH}_3\text{OH}$  qui s'échappe du polymère (étape 2 du mécanisme). L'extraction de l'hydrogène sous irradiation UV conduit à la formation d'une double liaison carbone-carbone [94, 97]. En conséquence, on obtient d'une part une structure polymère présentant une double liaison carbone-carbone et d'autre part un acide carboxylique gazeux  $\text{HCOOH}$  (étape 3 du mécanisme de la figure IV.14). Ceci est mis en évidence d'abord par une diminution, après le vieillissement sous décharge couronne, de l'intensité du pic d'absorption à  $1750\text{ cm}^{-1}$  correspondant à  $\text{C}=\text{O}$  et ensuite à l'apparition d'un pic à  $1650\text{ cm}^{-1}$  associé à la liaison  $\text{C}=\text{C}$ .

#### IV.6.3. Influence du vieillissement électrique sur les phénomènes de charges

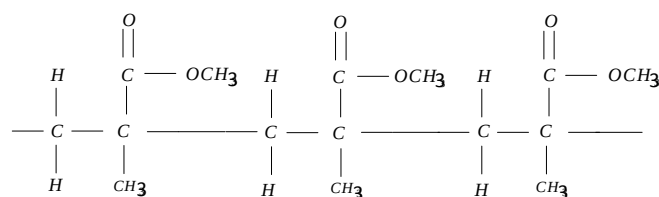
Les résultats d'analyses effectuées sur deux types d'échantillons (un échantillon vierge et un échantillon vieilli), ont montré que la valeur de la quantité de charge piégée à l'équilibre  $Q_s$  et la valeur de la constante de temps de charge  $\tau$  ont diminué après le vieillissement électrique. Ceci est dû à l'augmentation de la conductivité surfacique du polyméthacrylate de méthyle.

Dans notre cas, le processus conduisant à l'équilibre semble principalement assuré par le courant de fuite, bien que l'émission d'électrons secondaires puisse être augmentée par le changement de rugosité de la surface du PMMA [98]. La rupture de liaison au niveau de la chaîne du polymère conduit à la création de radicaux libres qui peuvent augmenter la conductivité de surface déjà améliorée par les molécules d'eau absorbées.

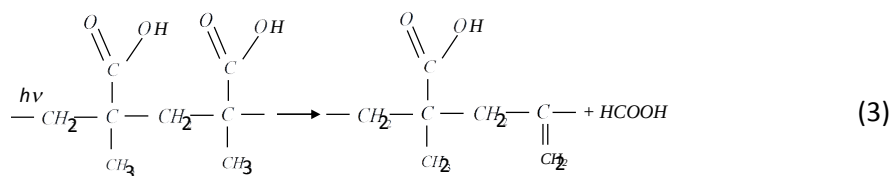
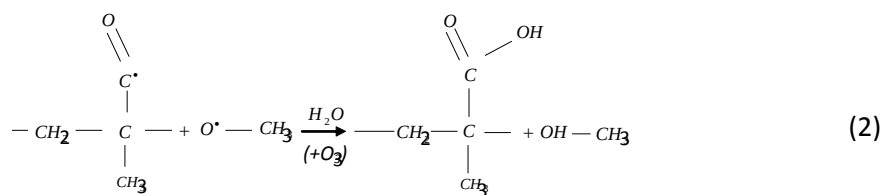
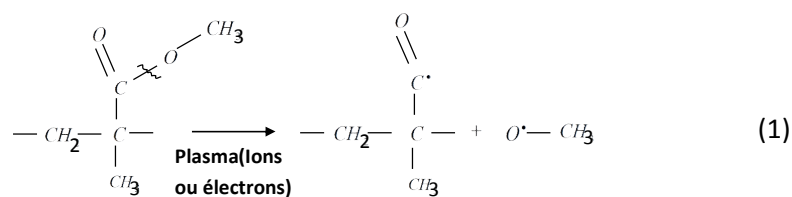
La constante de temps de charge est plus faible pour l'échantillon vieilli. En effet, pour cet échantillon, une augmentation de la conductivité de surface a été observée, ce qui entraîne une diminution du temps nécessaire pour que le PMMA, vieilli et irradié, atteigne l'état d'équilibre où le nombre d'électrons entrants est égal au nombre d'électrons sortants [99]. Cet effet est principalement lié à un mécanisme de conduction dans lequel la constante de temps est inversement proportionnelle à la conductivité. Les résistivités mesurées obtenues confirment non seulement le changement de la valeur de la conductivité de surface du PMMA, mais aussi la surface des canaux conducteurs suivis par les courants de fuite. La résistivité superficielle diminue avec le vieillissement qui conduit à la formation de canaux partiellement conducteurs. L'augmentation de la densité des défauts à la surface du polymère, attribués à la

génération de groupements polaires et de radicaux libres ( $O = C^*$ ,  $OH^*$ ), est susceptible d'améliorer la conduction. La génération de défauts supplémentaires entraîne une augmentation des états d'énergie localisés, ce qui implique une légère augmentation de la permittivité et une diminution de la résistance à la rupture. Les électrons piégés peuvent être favorisés dans un mécanisme de conduction avec des énergies d'excitation plus faibles, ce qui entraîne une augmentation du courant de fuite et, par conséquent, une diminution de la constante de temps de charge.

L'augmentation du courant de fuite au cours de l'irradiation est donc directement liée à l'augmentation du potentiel de surface induit par la charge piégée.



(a)



(b)

**Fig. IV.14.** (a) Structure chimique du PMMA. (b) Réaction chimique du processus de dégradation du PMMA sous décharge : (1) : rupture de la liaison chimique C-OCH<sub>3</sub> du groupement carbonyle. (2) : formation de groupements OH sous l'effet de l'ozone. (3) : formation de la double liaison C=C sous irradiation UV.

#### IV.6.4. Influence du dopage sur les propriétés du PMMA

Par comparaison des analyses FTIR avant et après le dopage du PMMA, on remarque que ce dopage influe sur les propriétés du matériau, notamment sur ses propriétés électriques. En effet, la présence des groupements hydroxyle O-H, dont la formation constitue l'une des raisons de l'augmentation de la conductivité électrique, est constatée pour tous les spectres vierge et vieillis du PMMA. Les pics correspondant à ces groupements sont d'une intensité très faible pour les spectres du composite SAN/PMMA en comparaison avec ceux du PMMA pur. Il faut encore préciser qu'après un vieillissement électrique, nous avons constaté la disparition de quelques pics du spectre du PMMA, ce qui n'est pas le cas s'agissant du spectre FTIR du copolymère. De là, nous pouvons conclure que le polyméthacrylate de méthyle semble résister mieux aux décharges électriques lorsqu'il est mélangé avec du SAN. Néanmoins les analyses MEB ont montré que la structure du PMMA n'a pas changé après son mélange avec du SAN, ce dernier s'est réparti le long de la matrice sous formes circulaires, confirmant ainsi les résultats obtenus lors d'un mélange PS/PMMA [18] où le polystyrène (PS) n'a pas influencé la structure du PMMA. On peut s'attendre donc à une amélioration au niveau des propriétés mécaniques notamment les forces de traction.

#### IV.7. Conclusion

Le PMMA soumis à une décharge électrique, a subi une dégradation qui se traduit par la rupture de certaines liaisons chimiques et la formation de groupements carboxyliques OH qui pourraient favoriser la conduction superficielle.

Grâce à un dispositif expérimental et en se référant à des analyses MEB, AFM et EDX, nous avons pu observer la surface des échantillons vieillis électriquement et quantifier leurs teneurs en carbone et oxygène. Nous avons remarqué que le vieillissement des échantillons engendre l'augmentation du taux de carbone (C) et la diminution du taux d'oxygène(O).

Une analyse par spectroscopie infrarouge a montré que le taux de transmittance diminue après le vieillissement électrique des échantillons. Cela est dû à la dégradation de la surface du PMMA qui se traduit par la disparition de quelques groupements fonctionnels et l'apparition de nouveaux radicaux.

L'évolution de la résistivité de surface des échantillons de PMMA a été étudiée en se basant sur une mesure classique des caractéristiques I(V). Nous avons déduit que, contrairement au courant d'influence, le courant de fuite augmente avec le vieillissement des échantillons.

Nous avons mis en évidence l'effet du dopage du polyméthacrylate de méthyle avec du styrène acrylonitrile par comparaison des spectres FTIR du PMMA avec ceux du copolymère SAN/PMMA. Les propriétés électriques de ce dernier se sont améliorées en comparaison avec celles du PMMA pur. En effet nous avons remarqué, pour le copolymère, la réduction des groupements hydroxyles OH qui absorbent l'humidité environnante et favorisent ainsi la conduction électrique superficielle. Une analyse MEB a montré la distribution de particules de SAN en formes circulaires, de quelques micromètres, le long de la couche de PMMA, indiquant ainsi la non influence de ce dopage sur la structure du PMMA. Le développement

d'arborescences à la surface du composite diélectrique vieilli sous décharges de surface a également été observé.

# **CHAPITRE V**

## **INFLUENCE DES CARACTERISTIQUES DE L'INTERFACE AIR-SOLIDE SUR LES PROPRIETES DIELECTRIQUES ET LE COURANT DE DECHARGE**

## V.1. Introduction

Nous allons présenter dans ce qui suit, l'influence de la polarité et du niveau de la tension appliquée sur les courants de décharges. Nous étudierons également l'influence de l'épaisseur de la couche d'air formant l'interface électrode HT- solide isolant, du degré de vieillissement et de la forme des électrodes sur le courant de décharge maximum. Cette partie de travail porte également sur l'influence de la fréquence et la durée de vieillissement sur les propriétés diélectriques du solide isolant et sur l'évolution de la charge associée à une impulsion maximum de courant.

## V.2. Spectroscopie diélectrique

Notre but est de suivre la variation de la permittivité relative, du facteur de dissipation et du facteur de pertes diélectriques, en fonction de la fréquence et de la durée de vieillissement du polyméthacrylate de méthyle. Le dispositif expérimental utilisé pour générer la décharge couronne est celui de la figure III.1.

### V.2.1. Mesures et analyses

Les propriétés diélectriques des échantillons de PMMA sont étudiées en utilisant un LCR-mètre de type Instek-LCR 817 (figure III.15). Dans notre étude, le facteur de dissipation, la permittivité relative et l'indice de pertes diélectriques ont été mesurés à basse tension (1 V) avec une fréquence allant de 0.5 à 10kHz.

Généralement, la permittivité écrite sous sa forme complexe est donnée par :

$$\varepsilon^* = \varepsilon' - j\varepsilon'' \quad (V.1)$$

La partie réelle  $\varepsilon'$  représente la permittivité relative qui nous donne des informations sur la capacité de stockage des diélectriques en présence d'un champ électrique.

La valeur de la permittivité relative pour un système plan-plan est donnée par l'équation (V.2).

$$\varepsilon' = \frac{e.C}{s.\varepsilon_0} \quad (V.2)$$

$e$  : Épaisseur de l'échantillon [m]

$C$  : Capacité entre les deux électrodes [F]

$s$  : Surface de l'échantillon [m<sup>2</sup>]

$\varepsilon_0$  : Permittivité du vide [F/m]

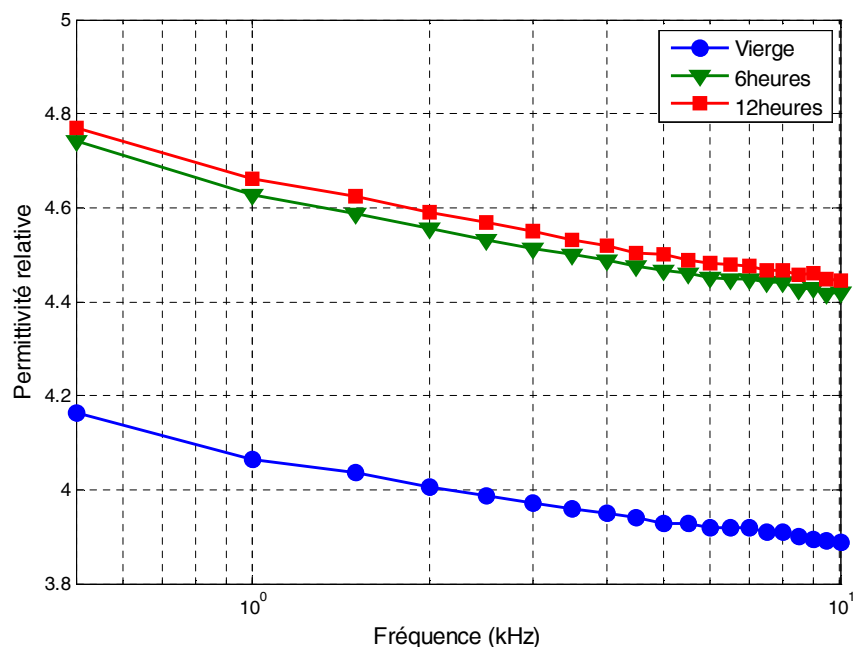
La partie imaginaire  $\varepsilon''$  de l'équation (V.1) représente le facteur de pertes diélectriques. Sa valeur est donnée par :  $\varepsilon'' = \varepsilon \cdot \text{tg}\delta$  ( $\text{tg}\delta$  étant le facteur de dissipation diélectrique).

### V.2.1.1. Permittivité relative

Les figures V.1 et V.2 montrent respectivement l'influence de la fréquence et de la durée de vieillissement sur la permittivité relative du matériau étudié.

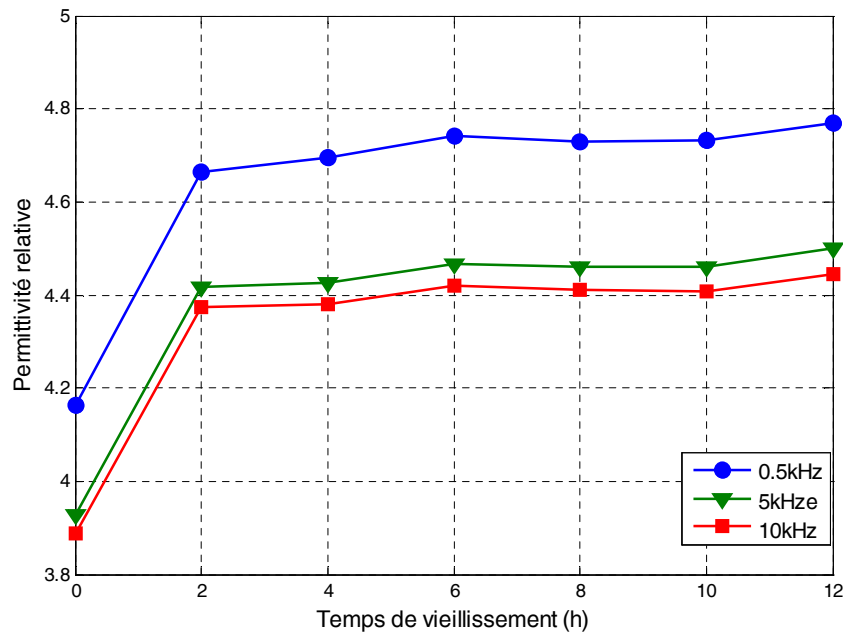
La figure V.1 montre que l'augmentation de la fréquence induit une diminution de la permittivité relative du PMMA. Cette diminution est plus importante pour les faibles valeurs de la fréquence. En effet, pour l'échantillon vierge, la valeur de la permittivité relative passe de 4.163 à 500Hz pour atteindre 4.064 à 1kHz, soit une différence de 2.37%, tandis que pour les hautes fréquences, 9.5kHz et 10kHz par exemple, elle passe de 3.892 à 3.888 soit une différence de 0.1% seulement. Cette faible diminution aux fréquences élevées pourrait être attribuée au phénomène de relaxation diélectrique [100].

La figure V.2 nous donne la variation de la permittivité relative en fonction du temps de vieillissement. On remarque que cette permittivité augmente avec l'augmentation du temps de vieillissement. Pour 12 heures de vieillissement et pour des fréquences respectives de 0,5kHz, 5kHz et 10kHz, elle passe de (4.163, 3.928 et 3.888) à (4.77, 4.499 et 4.444). L'augmentation de la permittivité relative serait due à l'augmentation du volume du matériau lors de son exposition à la décharge couronne [101] et au phénomène des chocs subis par les dipôles suite à leur agitation et le temps de relaxation associé.



**Fig. V.1.** Permittivité relative en fonction de la fréquence pour différents temps de vieillissement



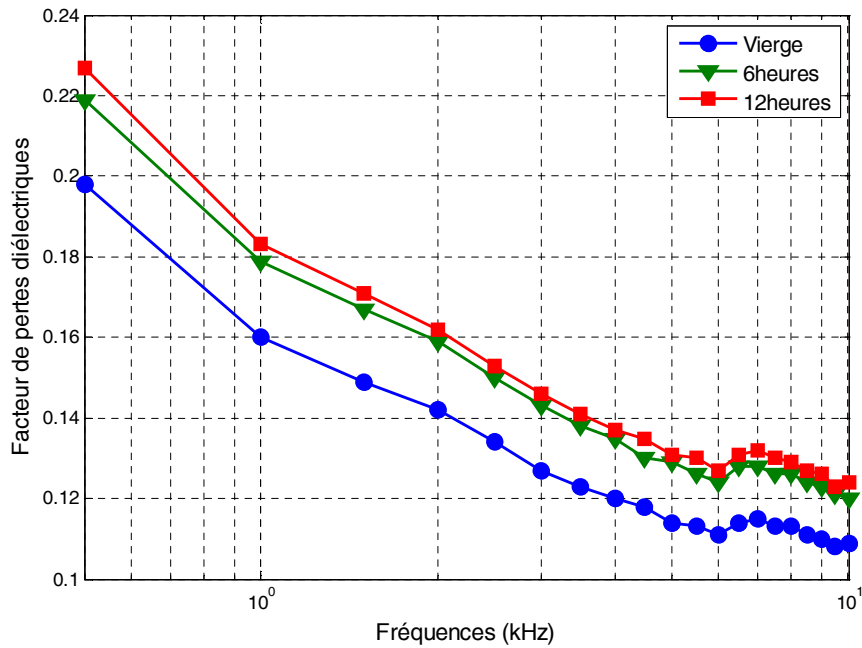


**Fig. V.2.** Permittivité relative en fonction du temps de vieillissement pour différentes fréquences

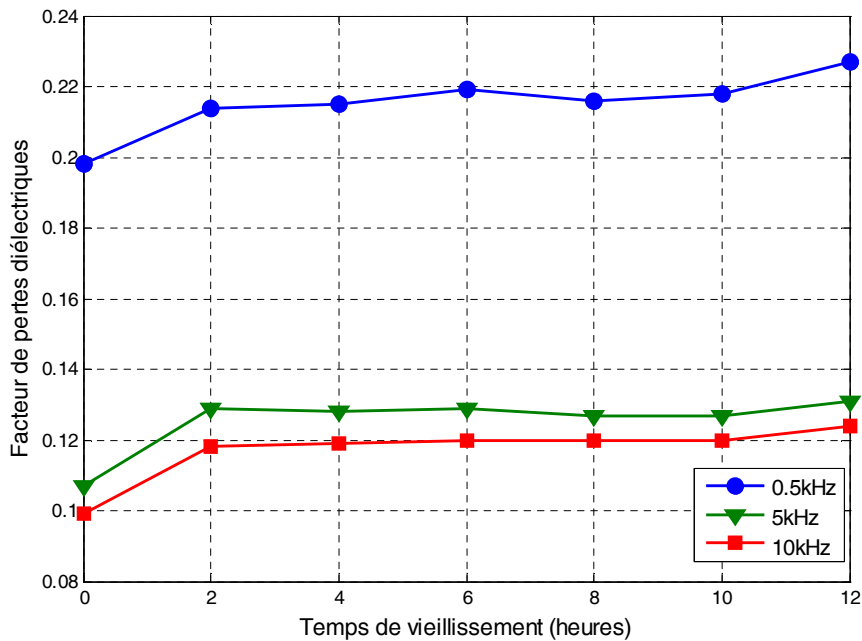
#### V.2.1.2. Facteur de pertes diélectriques

Les deux figures V.3 et V.4 représentent respectivement la variation du facteur de pertes en fonction de la fréquence et en fonction du temps de vieillissement.

La figure V.3 montre clairement la diminution de la valeur du facteur de pertes avec l'augmentation de la fréquence pour les différents temps de vieillissement. Ce comportement peut être expliqué par la relaxation des dipôles [102, 103]. Au contraire, le facteur de pertes augmente légèrement avec l'augmentation du temps de vieillissement comme le justifie la figure V.4. En effet, on remarque que pour une fréquence de 0.5kHz, par exemple, la valeur du facteur de perte passe de 0.198 pour un échantillon vierge à 0.227 pour un échantillon vieilli pendant 12 heures. Il est à noter que toute augmentation ou diminution du facteur de pertes, correspond à une augmentation ou à une diminution de pertes d'énergie dans le matériau.



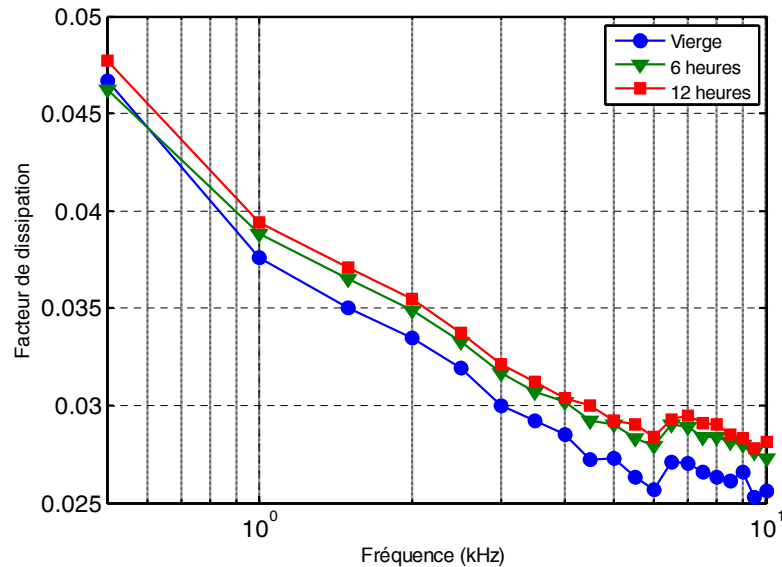
**Fig. V.3.** Facteur de pertes diélectriques en fonction de la fréquence pour différents temps de vieillissement



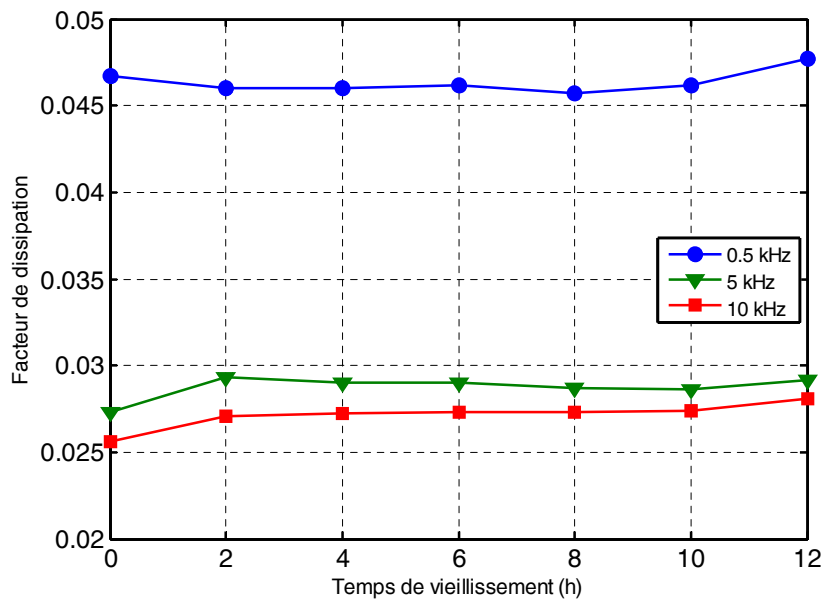
**Fig. V.4.** Facteur de pertes diélectriques en fonction du temps de vieillissement pour différentes fréquences

### V.2.1.3. Facteur de dissipation

Lors du tracé des courbes représentant le facteur de dissipation en fonction de la fréquence et du temps de vieillissement, nous avons enregistré un comportement similaire au comportement du facteur de pertes. Le facteur de dissipation diminue de façon significative en fonction de la fréquence mais augmente légèrement avec l'augmentation du temps de vieillissement, comme le montre respectivement les figures V.5 et V.6.



**Fig. V.5.** Facteur de dissipation en fonction de la fréquence pour différents temps de vieillissement



**Fig. V.6.** Facteur de dissipation en fonction du temps de vieillissement pour différentes fréquences

### **V. 3. Courant de décharge**

Le schéma de l'installation expérimentale utilisée dans ce cas est celui de la figure III.9.

#### **V.3.1.Résultats expérimentaux et discussion**

Le courant de décharge présente trois composantes distinctes : le courant capacitif, le courant synchrone et le courant impulsionnel. C'est ce dernier que nous avons étudié, il correspond aux décharges partielles dans la couche d'air en série avec l'échantillon de polymère.

En faisant varier la tension appliquée et l'épaisseur de l'intervalle d'air, nous enregistrons les impulsions positives et négatives de plus grandes amplitudes, ces impulsions correspondent au courant maximum de la décharge.

##### **V.3.1.1.Forme des impulsions du courant de décharge**

La figure V.7 montre la forme des impulsions de courant obtenues en utilisant le montage de la figure III.9. Le temps de montée est pratiquement le même pour les impulsions positives et les impulsions négatives dans la limite des essais que nous avons effectués et il varie peu. Nous avons constaté que le temps de descente des impulsions négatives, contrairement à celui des impulsions positives, varie dans une assez large plage (Figure V.7 b et c). Les impulsions en polarité positive ont une amplitude plus importante par rapport à celles des impulsions négatives. Les faibles temps de montée quant à eux, correspondent à une grande vitesse de propagation du streamer. Le temps de montée est dû au déplacement des électrons qui ont une grande mobilité alors que le temps de descente est dû au déplacement des ions qui ont une faible mobilité [104]. Ainsi les impulsions de courant négatives présentent des paliers, après la valeur de crête, qui seraient dus au déplacement lent des ions. En polarité positive, les impulsions caractérisant les streamers se propagent plus vite sur la surface du solide que dans l'air grâce à la photo ionisation et à la photo émission du solide isolant. En polarité négative, les impulsions de Trichel caractérisent un régime diffus ou homogène [105].

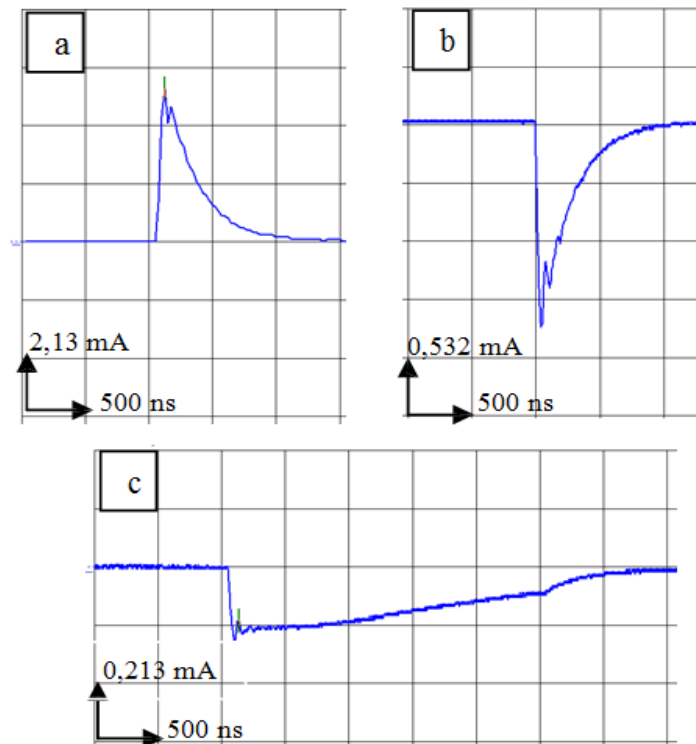


Fig. V.7. Impulsions de courant : a) positive ; b et c) négatives

### V.3.1.2. Influence du niveau de la tension sur le courant maximum de décharge

Les figures V.8, V.9 et V.10 représentent la variation du courant maximum de décharge en polarité positive et négative, pour différents échantillons (PMMA, SAN et résine époxy) ayant une épaisseur de 3mm. L'intervalle d'air séparant l'électrode haute tension et la surface de l'échantillon est de 3 mm. On remarque que dans le cas des trois isolants, l'intensité du courant augmente avec la tension appliquée pour les deux polarités. Cependant, les impulsions positives sont nettement plus grandes que les impulsions négatives. Ceci serait dû au fait que les streamers positifs se développent sur des distances plus longues que les streamers négatifs[46]. En effet, l'amplitude des impulsions de courant positives augmente avec la tension appliquée alors que celle des impulsions négatives reste pratiquement constante (l'augmentation n'est pas importante). En polarité négative, l'accumulation d'électrons à la surface du solide isolant empêche le champ électrique de croître [78] et les décharges ne se développent plus malgré l'augmentation de la tension [106]. Le champ électrique est aussi réduit par l'accumulation d'ions négatifs formés par attachement d'électrons libres avec les molécules d'oxygène dans l'intervalle d'air, l'oxygène étant électronégatif [78].

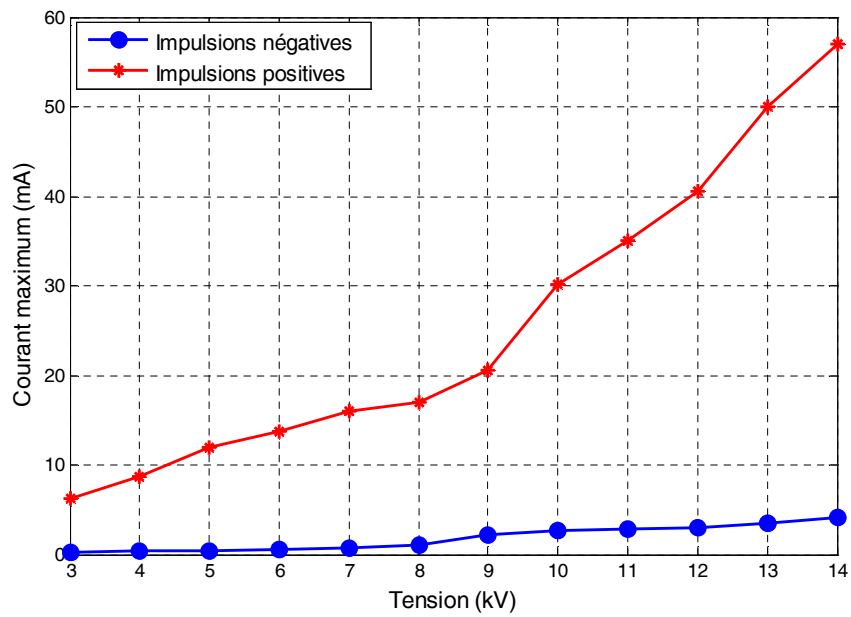


Fig. V.8. Courant maximum de décharge du PMMA en fonction de la tension

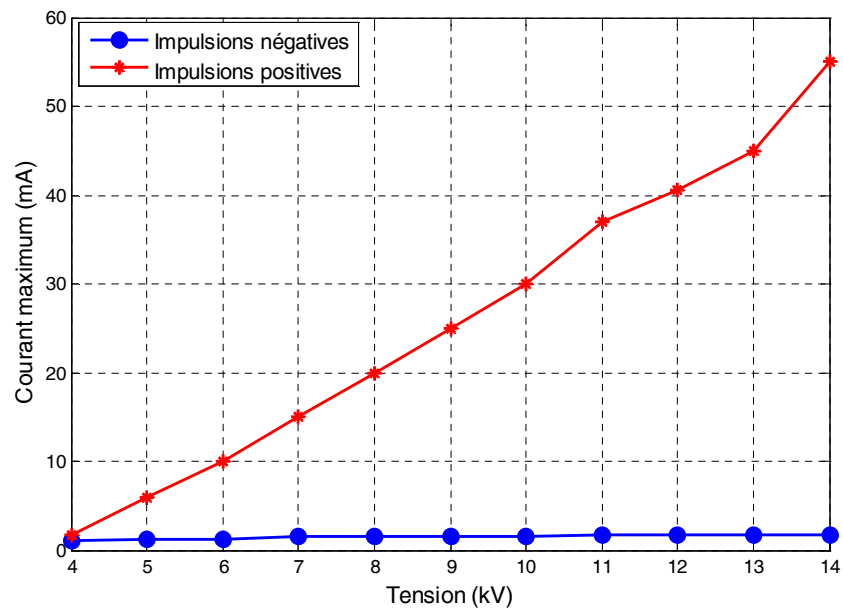
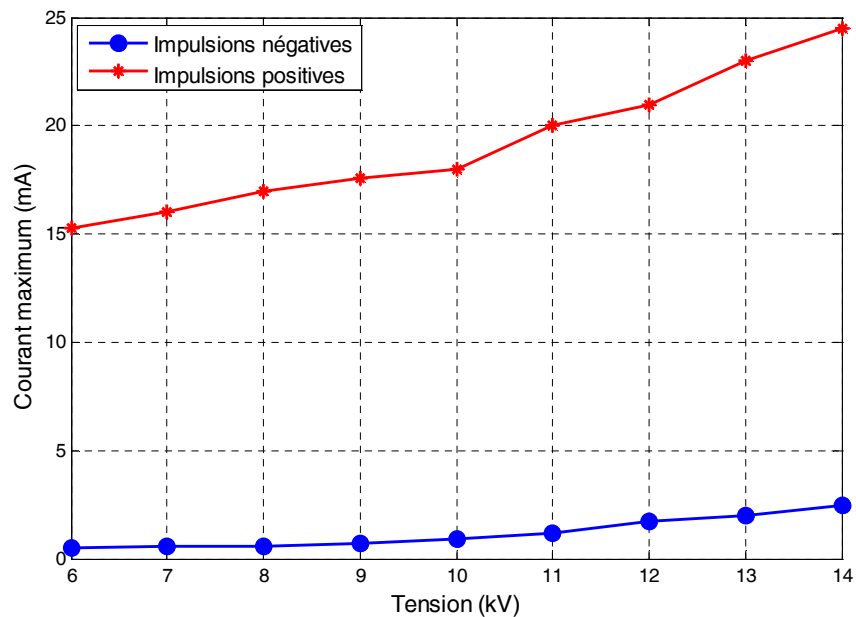


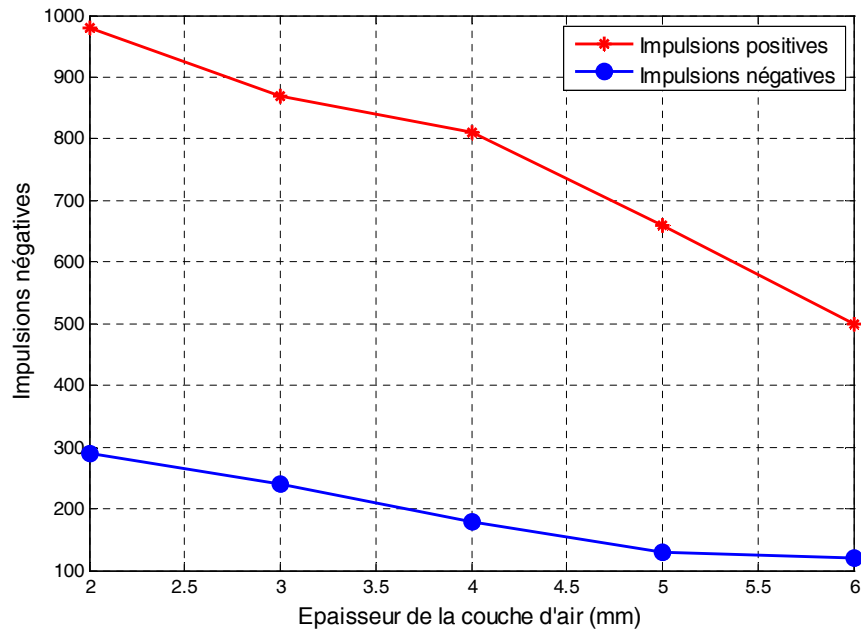
Fig. V.12. Courant maximum de décharge du SAN en fonction de la tension



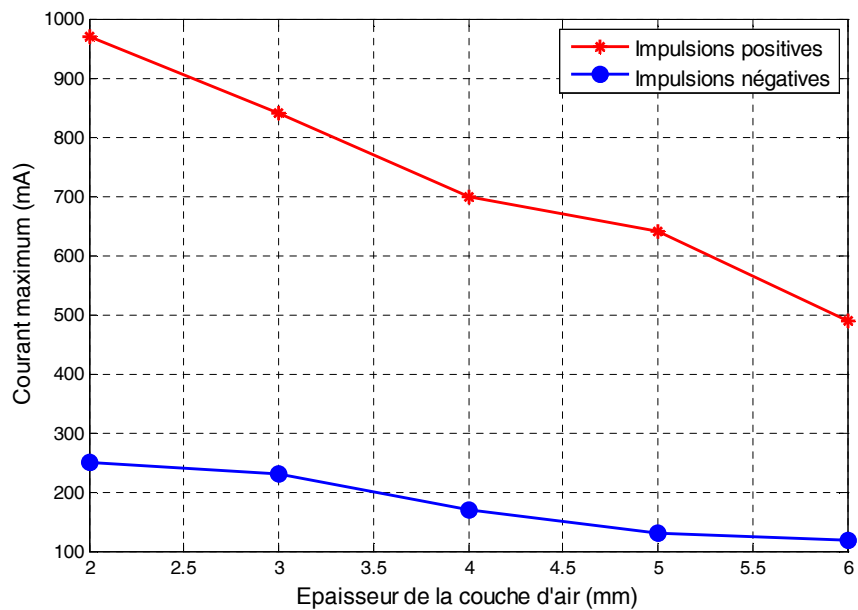
**Fig. V.10.** Courant maximum de décharge de la résine époxy en fonction de la tension.

### V.3.1.3. Influence de l'épaisseur de l'intervalle d'air sur le courant maximum de décharge

Pour l'étude de l'influence de l'épaisseur de la couche d'air séparant l'électrode haute tension de la surface du diélectrique, nous avons utilisé trois isolants différents : le PMMA, le SAN et la résine époxy. La variation du courant de décharge en fonction de l'intervalle d'air est donnée par les figures V.11, V.12 et V.13. Les trois figures suivantes, montrent que l'amplitude des impulsions diminue avec l'augmentation de l'intervalle d'air pour les deux polarités et pour les différents échantillons. La diminution est moins importante pour les impulsions négatives.

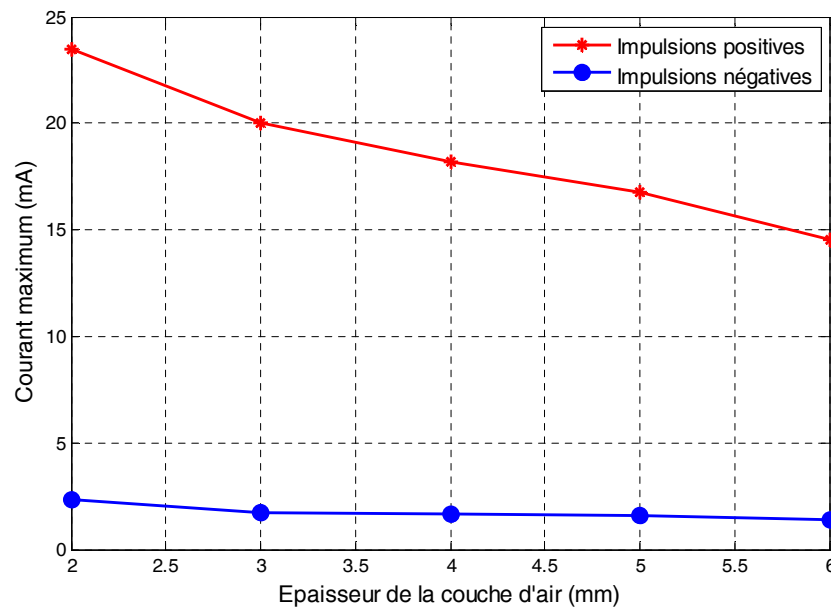


**Fig. V.11.** Courant maximum de décharge du PMMA en fonction de l'intervalle d'air pour une tension d'alimentation de 12kV.



**Fig. V.12.** Courant maximum de décharge du SAN en fonction de l'intervalle d'air pour une tension d'alimentation de 12kV.

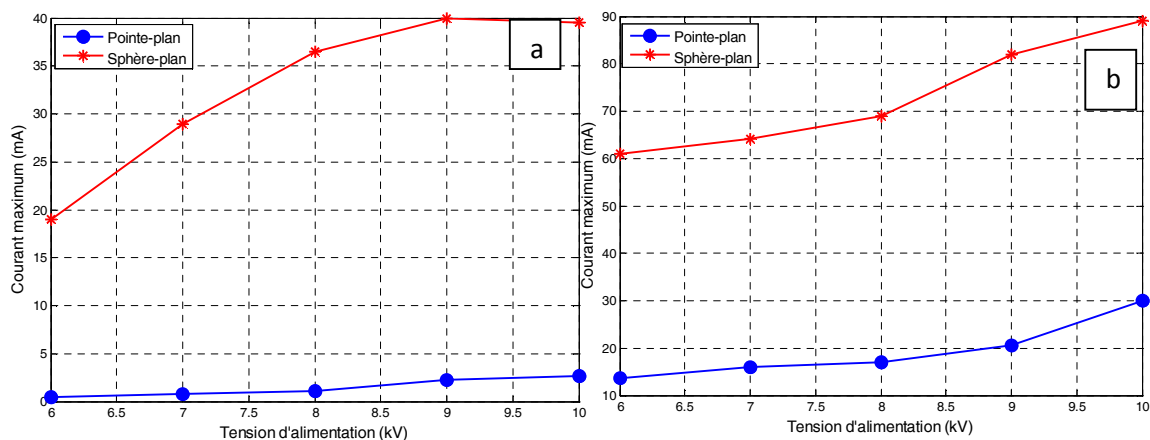




**Fig. V.13.** Courant maximum de décharge de la résine époxy en fonction de l'intervalle d'air pour une tension d'alimentation de 12kV.

#### V.3.1.4. Influence de la forme des électrodes sur le courant maximum de décharge

Afin d'évaluer l'influence de la forme des électrodes sur le courant maximum de décharge, nous avons fait vieillir des échantillons de PMMA sous décharges couronne en utilisant deux types de configuration (figure V.14). Le vieillissement s'est effectué pour différentes valeurs de la tension. La figure suivante montre que le courant maximum augmente pour les deux systèmes d'électrodes et cela pour les deux polarités. L'augmentation est plus importante pour la configuration sphère-plan où l'intensité du courant est plus significative par rapport à celle du système pointe-plan, et ce pour les deux polarités.



**Fig. V.14.** Courant maximum de décharge pour les systèmes d'électrodes pointe-plan et sphère-plan en fonction de la tension : (a) impulsions négatives ; (b) impulsions positives.

## V.4. Charge associée à l'impulsion maximum de courant

### V.4.1. Evaluation de la charge associée à une impulsion de courant

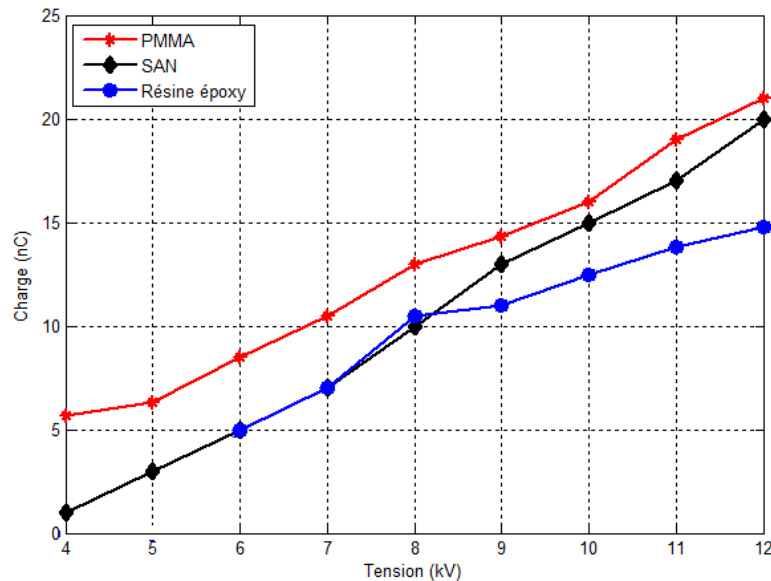
La charge représente le nombre d'électrons qui, lors du développement des avalanches électroniques, sont recueillis ou émis (suivant la polarité) au niveau de l'électrode haute tension.

La charge est calculée en utilisant la relation suivante :

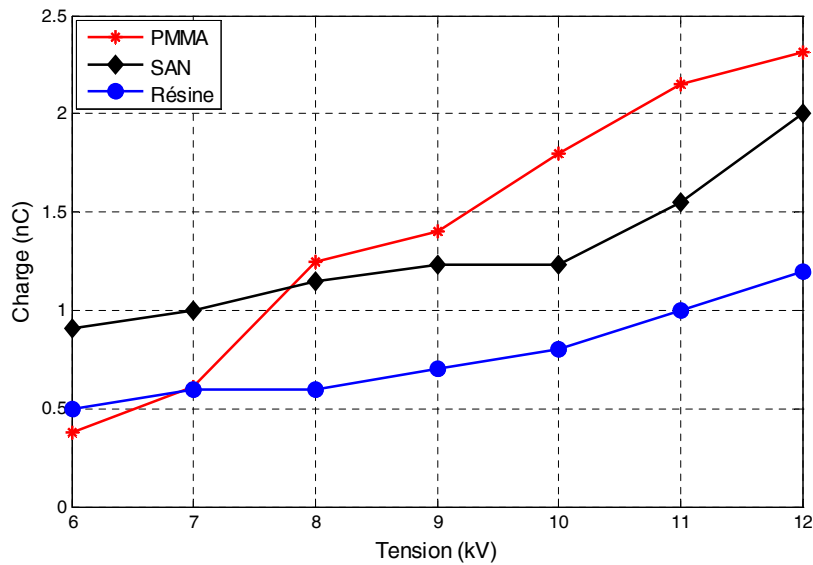
$$Q = \int_{\Delta t} I(t).dt, \quad (V.3)$$

Avec  $\Delta t$  = durée de l'impulsion

Les figures V.15 et V.16, montrent la variation de la charge maximale de l'impulsion de courant, respectivement en polarité positive et en polarité négative, en fonction de la tension pour les échantillons de PMMA, de SAN et de résine époxy.



**Fig. V.15.** Charge positive maximale en fonction de la tension appliquée pour différents isolants (PMMA, SAN et Résine époxy)



**Fig. V.16.** Charge négative maximale en fonction de la tension appliquée pour différents isolants (PMMA, SAN et Résine époxy)

L'épaisseur du solide isolant a aussi une influence sur la charge produite. En effet, la charge maximale augmente lorsque l'épaisseur du solide diminue. L'allure de la courbe  $Q=f(U)$  peut être interprétée comme suit : lorsqu'une impulsion de courant est enregistrée, la charge correspondante s'étend sur une longueur  $L$  à la surface d'un isolant d'épaisseur  $d$ . La capacité du diélectrique à l'endroit où se produit la décharge est proportionnelle à la longueur de cette dernière :

$$C = K_1 \cdot L / d \quad (V.4)$$

Comme la longueur de la décharge est proportionnelle à la tension appliquée [68], nous pouvons écrire

$$C = K_1 \cdot (K_2 \cdot U) / d \quad (V.5)$$

Nous avons :

$$Q = C \cdot U \quad (V.6)$$

D'où l'expression de la charge en fonction de la tension appliquée et de l'épaisseur du solide isolant :

$$Q = K_1 \cdot K_2 \cdot U^2 / d \quad (V.7)$$

La relation (V.7) montre que la charge est proportionnelle au carré de la tension et inversement proportionnelle à l'épaisseur  $d$  du diélectrique.

## V.5. Conclusion

Ce chapitre a été consacré à l'étude de l'influence des caractéristiques de l'interface air-solide sur les propriétés diélectriques et le courant de décharge. L'étude a été réalisée sur trois types de polymères : le PMMA, le SAN et la résine époxyde.

Nous nous sommes intéressés, lors de l'étude des propriétés diélectriques, à certains paramètres notamment la permittivité relative, le facteur de pertes diélectrique et le facteur de dissipation. Cette étude a montré que tous ces paramètres sont influencés par le vieillissement électrique des isolants.

Parmi les facteurs influençant le courant de décharge et qui ont fait l'un des objets de ce chapitre, le niveau de la tension, l'épaisseur de l'intervalle d'air séparant l'électrode HT de la surface de l'échantillon et la forme des électrodes. En effet, nous avons montré que l'amplitude maximum des impulsions mesurées augmente avec l'augmentation de la tension d'alimentation. Cependant, elle diminue avec l'augmentation de l'épaisseur de la couche d'air séparant l'électrode haute tension de la surface de l'isolant.

La forme des électrodes influe aussi sur l'amplitude maximum des impulsions de courant. Notre étude effectuée sur deux types de configuration, sphère-plan et pointe-plan, a montré que le courant maximum est plus important dans le cas de la sphère.

Nos résultats nous ont permis aussi d'évaluer la charge associée à une impulsion maximum de courant, en recourant à l'enregistrement de la courbe de courant impulsionnel puis au calcul de la charge par intégration.

## **CONCLUSION GENERALE**

Ce travail a été dédié à l'étude expérimentale portant sur les caractéristiques de l'interaction décharge électrique/surface d'un solide isolant. Nous nous sommes intéressés à la dégradation du PMMA soumis à une décharge à barrière diélectrique et vieilli sous différentes conditions, en se référant à des analyses MEB, EDX, AFM et FTIR. Nous avons constaté une transformation superficielle due au vieillissement électrique qui se traduit par la rupture de certaines liaisons chimiques et la formation de quelques groupements chimiques. Nous avons remarqué que le vieillissement des échantillons engendre l'augmentation du taux de carbone et la diminution du taux d'oxygène et plusieurs facteurs peuvent influencer sur le comportement du solide soumis aux décharges électriques. En effet, lors du vieillissement électrique, la décharge favorise le développement d'arborescences dont la longueur dépend de la durée de vieillissement et de l'épaisseur de la couche d'air séparant l'échantillon de l'électrode haute tension. Ainsi, nous avons pu observer une augmentation de la rugosité de surface avec le vieillissement électrique, ce qui a un impact direct sur les propriétés de surface, en particulier sur la mouillabilité des échantillons. Ceci est justifié par les résultats des analyses FTIR qui montrent bien l'augmentation des groupements fonctionnels OH. Les analyses FTIR ont montré aussi que sous l'effet des décharges électriques, le taux de transmission a diminué, des groupements fonctionnels sont apparus et d'autres ont disparu, dénotant ainsi la dégradation des échantillons vieillis sous décharge électrique.

Dans le but d'améliorer les propriétés du PMMA, nous l'avons dopé avec du styrène acrylonitrile (SAN). Nous avons constaté, à cet effet, une amélioration des propriétés électriques du copolymère SAN/PMMA en comparaison avec le PMMA pur et ceci se justifie par la réduction des groupements hydroxyles OH, sans avoir influencé les propriétés du polyméthacrylate de méthyle.

L'évolution de la résistivité de surface des échantillons de PMMA a été étudiée en se basant sur une mesure classique des caractéristiques courant-tension. Nous avons déduit que contrairement au courant d'influence, le courant de fuite augmente avec le vieillissement des échantillons.

L'effet de la décharge couronne sur les propriétés diélectriques du PMMA a été évalué. Il a été démontré que l'évolution de ces propriétés est en corrélation avec les évolutions physicochimiques des échantillons et qu'elles peuvent être considérées comme des paramètres de diagnostic utiles pour estimer le degré de détérioration des performances du PMMA. En effet, nous avons pu montrer que la permittivité relative, l'indice de pertes diélectriques et le facteur de dissipation varient tous en fonction du temps de vieillissement et de la fréquence du champ appliqué.

Une étude menée sur trois types de polymères (PMMA, SAN, résine époxyde), portant sur l'influence des caractéristiques de l'interface air-solide sur les impulsions de courant et la charge associée a montré que la position de l'interface, le niveau de la tension et la forme des électrodes influent sur le niveau de dégradation de l'isolant solide considéré. A ce propos, nous avons montré que l'amplitude maximum des impulsions en polarité positive et en

polarité négative diminue avec l'augmentation de l'épaisseur de la couche d'air séparant l'électrode haute tension de la surface de l'échantillon. Par ailleurs l'amplitude maximum des impulsions augmente avec l'augmentation de la tension appliquée. L'étude montre également que l'augmentation de l'amplitude maximum est plus importante pour le système sphère-plan comparativement au système pointe-plan. La charge associée à une impulsion maximale de courant est proportionnelle au carré de la tension et inversement proportionnelle à l'épaisseur de l'isolant.

Plusieurs perspectives sont ouvertes par ce travail : une étude du vieillissement électrique du PMMA en présence d'autres contraintes telles que la contrainte thermique et les rayons UV nous permettra de mieux comprendre le phénomène de dégradation de ce polymère lors du fonctionnement des systèmes électriques. La prise en considération de la durée de vieillissement et de l'épaisseur de l'isolant ainsi que de l'humidité, permet aussi de mieux comprendre les propriétés diélectriques et l'évolution du courant de décharge. Il serait également souhaitable de mettre en évidence l'influence du taux de pourcentage en SAN sur les propriétés du copolymère SAN/PMMA.

- [1] E. H. A. Mahieddin Rahal; "Les mécanismes physiques du contournement des isolateurs haute-tension"; Thèse de doctorat; Université Paul Sabatier de Toulouse; 1979.
- [2] M. Remadnia, M. Nemamcha, L. Herous; "Etude du Déclin de Potentiel d'une Surface Chargée par une Décharge Electrique de Type Couronne"; 4th International Conference on Computer Integrated Manufacturing CIP'2007; 2007.
- [3] R. Coelho, L. Levy, D. Sarraïl; "On the natural decay of corona charged Teflon sheet"; IEEE; pp.1033-1037; 1984.
- [4] L.A. Dissado, J.C. Fothergill; "Electrical degradation and breakdown in polymers"; Ed. Peter Peregrinus Ltd., London; 1992.
- [5] E. Auber; "Diagnostic optique du vieillissement électrique des résines époxydes sous faible champ Electrique"; Thèse de doctorat ; Université de Toulouse; Novembre 2008.
- [6] G. Mazzant, G. C. Montanari; "The Role of Trapped Space Charges in the Electrical Aging of Insulating Materials"; IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 4 No. 5; 1997.
- [7] M. Aguet, M. Lanovici; "Hautetension"; Edition Géorgi; 1982.
- [8] A.J. Philips, D.J. Childs, H.M. Schneider; "Water drop corona effects on full-scale 50kV non-ceramic insulators"; IEEE Transactions on Power Delivery, Vol.14, pp. 258-265; 1999.
- [9] G. Zhang, W. Zhao, Y. Sun, Z. Yan; "Surface discharge phenomena of silicon in atmospheric air"; Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena; 2003.
- [10] M. A. Handala, O. Lamrous; "Surface degradation of styrene acrylonitrile exposed to corona discharge" ; European Transactions on Electrical Power, pp. 494-505; 2008.
- [11] A. Boubakri, N. Guermazi, K. Elleuch, H.F. Ayedi; "Study of UV-aging of thermoplastic polyurethane material"; Materials Science and Engineering: A, Vol. 527, No. 7-8, pp. 1649-1654; 2010.
- [12] Mu. Dan, Li.Jian-Quan, W.Song; "Meso Dyn simulation study on the phase morphologies of miktoarm PEO-*b*-PMMA copolymer induced by surfaces"; J Polym. Res.; 2012.
- [13] Y. DaeHyeok, Y. GoanHee, S. GyunJeong, K. S. Hee, M. R. John, K. Gilson, L. Hai Bang; "Surface and Chemical Properties of Surface-Modified UHMWPE Powder and Mechanical and Thermal Properties of Its Impregnated PMMA Bone Cement V. Effect of Silane Coupling Agent on the Surface Modification of UHMWPE Powder"; Macromolecular Research, Vol. 13, No. 2, pp 120-127; 2005.



- [14] A. Balamurugan, S. Knnan, V. Selvaraj, S. Rajesvari; "Development and Spectral Characterisation of Poly( Methyl Methacrylate) / Hydroxyapatite Composite for Biomedical Applications"; Trends Biometer. Artil.Organs. Vol 18 (1), pp 41-45; 2004.
- [15] C. NimaiNayak, C. Y. Yue, Y. C. Lam, Y. L. Tan; "Thermal bonding of PMMA: effect of polymer molecular weight"; MicrosystTechnol (2010) 16:487–491; DOI 10.1007/s00542-009-0926-y; Received: 2 September 2009 / Accepted: 16 October 2009 / Published online: 10; November 2009.
- [16] V. Alenka ,M. Miran ; "Surface modification and ageing of PMMA polymer by oxygen plasma treatment"; Vacuum, Volume 86, Issue 6, 27, Pages 634-637; January 2012.
- [17] R. Bartnikas; "Engineering Dielectrics"; Vol. I; Corona Measurement and Interpretation, ASTM Press, Philadelphia PA,; 1979.
- [18] K. Yongseok, P. Sangdo, S. S. Young, L. Naesung, S. Yongho, H. Seung-Jin.; "Domain Structures on PS-PMMA Mixture Films"; Journal of the Korean Physical Society, Vol. 54, No. 2, February, pp. 749-753; 2009.
- [19] C. Laurent; "Contribution à l'étude des mécanismes de la rupture diélectrique à long terme des polymères"; Thèse de Doctorat; UPS Toulouse; 1984 .
- [20] D. Bouguedad ; "Influence du vieillissement thermique sur les propriétés de l'éthylène propylène diène monomère (EPD)"; Thèse de doctorat ; 2010. Université Mouloud Mammeri ; Tizi-Ouzou.
- [21] T. WILDI. "Electrotechnique"; 4ème édition ; 2007.
- [22] J. Juchniewicz, J. Lisiecki; "Systèmes d'isolation haute tension"; Université Technologique de Wroclaw, WPW, Wroclaw; 1980.
- [23] M. Taleb; "Phénomènes aux Interfaces des isolants : Mesure et simulation"; Thèse de Doctorat; UPS Toulouse; 2011
- [24] M. Moudoud; "Etude de la conduction électrique dans les polymères isolants"; Thèse de Doctorat; Université Mouloud Mammeri Tizi-Ouzou; 2010.
- [25] P. Weiss; "La chimie des polymères" ; 2009-2010.
- [25]| A. Kahouli; "Etude des propriétés physico-chimiques et (di)-électriques du parylène C en couche mince"; Thèse de Doctorat en microélectronique et nanoélectronique; Université de Grenoble (France); 2011.
- [26] A. Et Taouil; "Effets des ultrasons haute fréquence sur l'électrosynthèse des polymères conducteurs"; thèse de doctorat en chimie, université de Franche-Comté; 2011.

- [27] D. Mu, , J. Q. Li, S. Wang; "MesoDyn simulation study on the phase morphologies of miktoarm PEO-*b*-PMMA copolymer induced by surfaces"; J Polym.Res.; doi.org/10.1007/s10965-012-9910-9; 2012.
- [28] J. M. Rhee, G. Khang, H. B. Lee; "Surface and Chemical Properties of Surface-Modified UHMWPE Powder and Mechanical and Thermal Properties of Its Impregnated PMMA Bone Cement V. Effect of Silane Coupling Agent on the Surface Modification of UHMWPE Powder"; Macromolecular Research, Vol. 13, No. 2, pp 120-127;2005.
- [30] R. Perrin, J. P. Scharef; "Chimie industrielle"; Editions Masson; Paris; 1995.
- [31] F. Z. Benabid-Zouai; "Etude des mélanges PVDF/PMMA et de leurs nano composites PVDF/PMMA/Maghnite en vue d'application comme revêtement"; Thèse de Doctorat; Université Ferhat Abbas Setif-1; 2015.
- [32] J. P. Trotignon, J. Verdu, A. Dobraczynski, M. Piperaud; "Précis Matières Plastiques"; AFNOR; 5ème édition; 1994.
- [33] J. P. Trotignon, J. Verdu, A. Dobraczynski, and M. Piperaud; "Précis Matières plastiques, structures-propriétés, mise en oeuvre, Normalisation"; Editions Nathan; Paris; 1996.
- [34] M. Reyne; "Les plastiques"; Presses Universitaires de France; Paris, 1998.
- [35] N. Berrahou; "Calcul des Propriétés Physiques par Modélisation Moléculaire Des Copolymères"; Thèse de doctorat; Université des Sciences et de la Technologie d'Oran Mohamed Boudiaf; 2016.
- [36] M. Hernandez Avila; "Etude de Mélanges ternaires époxyde / pmma / montmorillonite. Elaboration, contrôle de la morphologie et des propriétés"; thèse de doctorat; école doctorale matériaux de Lyon; 2017.
- [37] E. Brun, G. Teissedre, P. Rain, C. Guillermin, S. W. Rowe; "Caractérisation physico-chimique et mécanique du vieillissement hygrothermique de résines époxydes chargées silices"; Conférence Matériaux; novembre 2006.
- [38] O. G. Lavallée, G. Teissedre, C. Laurent, S. Rowe; "Polarisation et charge d'espace dans une résine époxy par mesure Electro Acoustique Pulsée"; MGE, Grenoble, 2-3; Avril 2003.
- [39] Glossaire des matériaux composites – CARMA- Actualisation; octobre 2012.
- [40] P. Bardonnet; "Technique de l'ingénieur"; A3465; 1992.
- [41] Xu. Guoxiang, B. Paul, McGrath, Clayton; "Surface Degradation of Polymer Insulators under Accelerated Climatic Aging in Weather-Ometer"; Conference record of the 1996 IEEE International Symposium on Electrical Insulation, Montreal, Quebec, Canada; Juin 1996.
- [42] A. Tslaf; "A Low current Arc Touching and Insulation Barrier in the Contact Gap"; IEEE Transactions on components, Hybrids, and manufacturing Technology, Vol.CHMT-9,No.1; Mars 1986.

- [43] S. H. Kim, E. A. Cherney, R. Hackam, K. G. Rutherford ; "Chemical Changes at the Surface of RTV Silicone Rubber Coatings on Insulators During Dry-band Arcing"; IEEE Transactions on Dielectric and Electrical Insulation; Volume: 1 ; Page(s): 106 - 123; 1994.
- [44] V. M. Moreno, R. S. Gorur; "Effect of Long-term Corona on Non-ceramic Outdoor Insulator Housing Materials"; IEEE Transactions on Dielectric and Electrical Insulation; Volume: 8; Page(s): 117 – 128; 2001.
- [45] D. Birtwhistle, P. Blackmore, A. Krivda, G. Cash and G. George; "Monitoring the Condition of Insulator Shed Materials in Overhead Distribution Networks"; IEEE Transactions on Dielectric and Electrical Insulation; Vol. 6 No. 5; octobre 1999.
- [46] J. H. Mason; "Discharges"; IEEE Trans. Electr. Insul, Vol EI-13 No 4; Août 1978.
- [47] V. Axel; "Conception et Simulation d'un réacteur Fil-Cylindre à Décharge Couronne avec Barrière Diélectrique Adapté aux Traitement des Oxydes d'Azote dans les Effluents Marqués par un Isotope"; thèse de doctorat; Université Paris VI Pierre et Marie Curie; Décembre 2002.
- [48] S. Raj, S. Esaki, M. Areef, G. Jason; "Multistress Accelerated Aging of Polymer Housed Surge Arresters Under Simulated Coastal Florida Conditions"; IEEE Transaction on Dielectrics and Electrical Insulation; Février 2006.
- [49] D. A. Skoog, D. M. West, J. Holler; "Chimie Analytique"; Traduction et Révision Scientifique de la 7<sup>e</sup> Edition Américaine par Claudine Buess-Herman, Josette Dauchot-Weymeers et Freddy Dumont; 2<sup>e</sup> Tirage; 2006.
- [50] C. Rodehed, A. Gustafsson, U. W. Gedde; "Electrical Strength and Chemical Surface Analysis of Polypropylene After Exposure to External Partial Discharges"; IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol. 25 No.6; Décembre 1990.
- [51] M. Tegar, A. Abimouloud, A. Mikhaldi, A. Boubakeur; "Influence of Discontinuous Pollution Width on the Surface Conduction Frequency Characteristics of the Leakage Current"; 2000 Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena; IEEE; 2000.
- [52] D. M. Hepburn, I. J. Kemp, A. J. Shields and J. Cooper; "Degradation of epoxy resin by partial discharges"; IEEE Proc-Sci. Meas Technol., Vol 147. No. 3; Mai 2000.
- [53] Y L Sam, P L Lewin, A E Davies, J S Wilkinson, J S Sutton and S G Swingler; "The Influence of Local Environmental Conditions on Surface Discharge Behavior"; Conference Record of the 2002 IEEE International Symposium on Electrical Insulation, Boston, MA USA; Avril 2002.
- [54] R. F. Milsom and P. A. Jamieson; "Introducing Circuit and Electromagnetic Models into System Level Simulation"; IEEE; DOI: 10.1049/ic:19951548; 1995.

- [55] S. Zhang, Y. Harano, K. Yoshida, H. Uchiike; "Discharge Characteristics of Surge-Discharge ac Plasma Displays by Observation Using An Ultra-High Speed Electronic Camera"; The Institute of Image Information and Television Engineers NII-Electronic Library Service.
- [56] T. Ikeda, H. Wake, T. Takada, Y. Mirooka; "Observation of AC Surface Discharge Dynamic Behavior Under Various Atmosphere Pressure"; Proceedings of 1998 international Symposium on Electrical Insulating Materials, in Conjunction with 1998 Asian International Conference on Dielectrics and Electrical Insulation and the 30<sup>th</sup> Symposium on Electrical Insulating Materials, Toyohashi, Japan, Sept. 27-30; 1998.
- [57] B. Zegnini and D. Mahi; "The Relationship Between the Estimated Intensity of Electric Current Flowing in the Electrolyte and the Propagation of the Local Discharge on an Electrolytic Surface Under AC Voltage"; Conference Record of the 2002 IEEE international Symposium on Electrical Insulation, Boston, MA USA, April 7-10; 2002.
- [58] F. Koliatene; "Les Décharges Partielles (DP) dans le diagnostic du Système d'Isolation de l'Avionique"; JCGE'08 LYON; 16 et 17 décembre 2008.
- [59] W. B. Zhao, G. J. Zhang, L. Xie, Z. Yan; "Investigation on Pulsed Discharge Phenomena of Silicon in Atmosphere"; 2004 International Conference on Solid Dielectrics, Toulouse, France; July 5-9; 2004.
- [60] S. Harada, A. Iwata and M. Tanaka; "Development of High Brightness, High Definition Surface Discharge AC-PDPS"; Advanced Technology R&D Center, Mitsubishi Electric Corporation, Hyogo, Japan; 1997.
- [61] S. Benharet, S. Bouazabia; "Recherche de l'efficacité de la barrière isolante dans un système pointe-barrière isolante-plan"; CNHT- 8eme conférence nationale sur la haute tension; Tiaret; 2011.
- [62] M. Aissou, A. Laifaoui et Y. Zebboudj; "Etude expérimentale de la décharge couronne bipolaire"; CNHT- 8eme conférence nationale sur la haute tension; Tiaret; 2011.
- [63] C. Buess-Herman, J. Dauchot-Weymeers, F. Dumont; "Chimie analytique"; 2<sup>e</sup> tirage; 2006.
- [64] M. Ribiere; "Spectroscopies d'émission et d'absorption appliquées à l'analyse de plasmas produits par impulsion laser"; Thèse de doctorat; Faculté des sciences de Rouen; 2008.
- [65] P. Langevin; "Sur la recombinaison des ions"; J. Phys. Radium, 1945, 6 (1), pp.1-5. 10.1051/jphys-rad:01945006010100.jp-a-00233897; 1945.
- [66] P. Degond; "Modélisation mathématique et numérique de décharges couronnes pour le contrôle d'écoulement"; Thèse de doctorat; Université Toulouse III - Paul Sabatier; 2010.

- [67] Y. Zhu, S. Yamashita, N. Anami, M. Otsubo, C.Honda and Y. Hashimoto; "Corona Discharge Phenomenon and Behavior of Water Droplets on the Surface of Polymer in the AC Electric Field"; Proceedings of the 7<sup>th</sup> International Conference on Properties and Applications of Dielectric Materials; Nagoya; June 1-5 2003.
- [68] A. B. Saveliev and G.J. Pietsch; "On the structure of dielectric barrier surface discharges"; International symposium on high pressure low temperature plasma chemistry (hakoneIII). Vol.2, PP.229-233-2002; 2002.
- [69] J. Larbre; "Décontamination de surface par un procédé plasma froid à pression"; thèse de doctorat; Université Paris Sud – XI; juin 2006.
- [70] W. Zheng, F. Liu, W. Wang; "Optical study of OH radical in a needle-plate DC corona Discharge"; The European Physical Journal Applied Physics, pp. 153-159; Mars 2007.
- [71] V. Guerra, P. Sa, J. Loureiro; "Kinetic modeling of low-pressure nitrogen discharges and post-discharges"; The European Physical Journal Applied Physics; Novembre 2004.
- [72] C. Le Gressus, Ph. Maire, J.P. Duraud; "The influence of surface Phenomena on Initiation of Discharges in Vacuum"; IEEE Transactions on Electrical Insulation; Volume: 24, Page(s): 969 – 977; 1989.
- [73] G. Yang, W. Wang, F. Liu, S. Zheng; "Experimental research of OH and  $N_2^+$  spatially resolved spectra in a needle-plate pulsed streamer discharge"; Plasma Chem Plasma Process (2008) 28:317-330 DOI 10.1007/s11090-008-9125-3; 2008.
- [74] A. A. Chernov, O. P. Korobeinichev, C. Modenese, L.G. Kristopa, L. N. Krasnoperov; "Kinetics, products, and mechanism of ethane destruction in corona discharge: Experiments and simulation"; ISSN0023-1584, Kinetics and Catalysis, 2010, Vol.51,No.3, pp.327- 336; 2010.
- [75] F. Liu, W. Wang, W. Zheng, and Y. Wang; "Optical study of radicas (OH, O, H, N) in a needle-plate bi-directional pulsed corona discharge"; Eur.Phys.J.D38, 515-522 (2006); DOI:10.1140/epjd/e2006-00059-5; 2006.
- [76] J. Chen, and J. H. Davidson; "A Global Model of Chemical Vapor Deposition of Silicon dioxide by direct-current corona discharges in dry air containing octamethylcyclotetrasiloxane vapor"; Plasma Chemistry and Plasma Processing, Vol. 24, No. 4; December 2004.
- [77] B. Lu, M.Ji, M. Wang, and J. Lu; "Plasma oxidation of benzene using DBD corona discharges"; JMEPEG (2008) 17:428-43 DOI:10.1007/epjd/e11665-007-5; 2008.
- [78] R. J. Van Brunt; "Physics and Chemistry of Partial Discharge and Corona – Recent Advances and Future Challenges"; National Institute of Standards and Technology Gaithersburg, Md 20899; USA; 1994.

- [79] C.Ghirllermin; "vieillissement électrique et thermique d'un composite résine époxyde-silice : étude des charge d'espace et de la conduction"; thèse doctorat; Université Joseph Fourier Grenoble I; 2004.
- [80]. V.A.Volokhin, O.S. Gefle, and S.M. Lebedev; "Effect of the melt flow direction on the treeing process in polymeric insulation"; Journal of Applied Mechanics and Technical Physics, Vol.50,No.1, pp. 72–79; 2009.
- [81]. M. Auget and M.Ianoz; "haute tension"; volume XXII, presse polytechnique et université Romandes.
- [82]. D. Kind and H. Kräner; "Voltage Insulation Technology"; Text book for electric Engineers; 1985.
- [83] H. Paqueton and J. Ruste; "Microscopie électronique à balayage-Principe et équipement"; Technique de l'ingénieur P865V2.
- [84] "Spectroscopie infrarouge"; [http :www.biophyresarch.com/pdf/ftir.pdf](http://www.biophyresarch.com/pdf/ftir.pdf).
- [85] M. T. Do; "Propriétés diélectriques des gels isolants : application aux composants d'électronique de puissance"; thèse de doctorat; université Joseph Fourier; mars 2008.
- [86] A.Tamra; "Spectroscopie diélectrique HyperFréquence de cellules individualisées sous électroporation"; thèse de doctorat; université de Toulouse; mars 2017.
- [87] ASTM Standard D257–99; "Standard test methods for DC resistance or conductance of insulating materials"; Insul. (2001), vol. 8, pp. 1029–1039; 2001.
- [88] N. Kireche, S. Rondot, F. Bitam-Megherbi, O. Jbara, M Gilliot, and J.M. Patat ; "Experimental study of polymethyl methacrylate damage under corona discharge"; Eur. Phys. J. Appl. Phys. 82, 31301; 2018.
- [89] C. L. Gressus ; L. Vide ; "science, technique et applications"; CSC'2 2-7 april (1995) N° 275; pp. 304-313; 1995.
- [90] B. Marungsri, H. Shinokubo, R. Matsuoka; "Effect of Specimen Configuration on Deterioration of Silicone Rubber for Polymer Insulators in Salt Fog Ageing Test"; IEEE Trans. Electr. Insul.(2006) 13 N°1 pp. 129-138; 2006.
- [91]T. G. Gustavsson, S. M. Gubanski, H. Hillborg, S. Karisson, U. W. Gedde; "Aging of Silicone Rubber under AC or DC Voltages in a Coastal Environment"; IEEE Trans. Electr. (2001) 8 N°6 pp. 1029-1039; 2001.
- [92] N. M. Chalashkanov, S. J. Dodd, L. A. Dissado, J. C.Fothergill; "Pulse sequence analysis on PD data from electrical trees in flexible epoxy resins"; Annual Report - Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, CEIDP(2011) art. n°. 6232771 pp.776-779; 2011.

- [93] J. Cazaux; "Some considerations on the secondary electron emission, from  $e^-$  irradiated insulators"; J. Appl. Phys.(1999) 85 1137-1147; 1999.
- [94] K.K. Okudaira and al; "radiation damage of poly(methylmethacrylate) thin films analyzed by UPS"; Journal of electron spectroscopy and related phenomena (1998), 88-91 pp. 913-917; 1998.
- [95] M. Goldman, A. Goldman and R. S. Sigmond; "The corona discharge, its properties and specific uses"; Pure& Appl. Chem (1985), Vol. 57, No. 9, pp. 1353-1362; 1985.
- [96] P.F. Biard, T.T. dang, J. Bocanegra, and A. Couvert; "Intensification of the  $O_3/H_2O_2$  advanced oxidation process using a continuous tubular reactor filled with static mixers: proof of concept"; Chemical Engineering Journal (2018) pp. 574-582; 2018.
- [97] J. A. Moore, and J. O. Choi; "Influence of stereochemistry on radiation-induced structural changes in PMMA"; American Chemical Society, Polymer Preprints Division of Polymer Chemistry (1990), 31(2),pp. 359-360; 1990.
- [98] S. Rondot, O. Jbara, S. Fakhfakh, R. Belkorissat, and J.M. Patat; "Effect of surface mechanical finishes on charging ability of electron irradiated PMMA in a scanning electron microscope"; Nucl. Instrum.Methods. Phys. Res. B: Beam Interact. Mater. Atoms 269, 2117 –2123; 2011.
- [99] Z.G. Song, H . Gong, C.K. Ong; "The effect of  $Al^{3+}$ ,  $Na^+$  and  $Li^+$  impurities on the charging ability of single-crystalline quartz under electron beam irradiation"; Materials Science and Engineering, V2, Elsevier; 1998.
- [100] J. C. Fothergill, S. J. Dodd, L. A. Dissado, T. Liu, U. H. Nilsson; "The measurement of very low conductivity and dielectric loss in XLPE Cables: A possible method to detect degradation due to thermal aging"; IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 18, No. 5, pp. 1544-1553; 2011.
- [101] A. Al-Arainy, N. H. Malik, M. I. Qureshi, M. N. Al-Saati; "The performance of strippable and bonded screened medium-voltage XLPE-insulated cables under long-term accelerated aging"; IEEE Transactions on Power Delivery, Vol. 22, No. pp. 2, 744-751; 2007.
- [102] Q. Wu, B. Qu, Y. Xu, Q. Wu; "Surface photo-oxidation and photostabilization of photo cross-linked polyethylene, Polymer Degradation and Stability"; Vol. 68, No. 1, pp. 97-102; 2000.
- [103] M. Celina, G.A. George; "Characterisation and degradation studies of peroxide and silanecrosslinked polyethylene, Polymer Degradation and Stability"; Vol. 48, No. 2, pp. 297-312; 1995
- [104] R.S. Nema and F. Zahra; "Study of Corona Pulses in Air-Solid Interface"; IEEE Conference Record of International Symposium on Electrical Insulation, pp.407-410,Virginia,USA; 1998.

- [105] R. Messaoudi, A.Younsi, F. Massine, B. Despax and C. Mayoux; "Influence of umidity on Current Wave form and Light Emission of a Low-Frequency Discharge Controlled by a Dielectric Barrier"; IEEE Trans.onDielectr.andElectr.Insul.,Vol.3,N°4,pp.537-543; 1996.
- [106] Y.H. Kwon, I.H. Park, S.Hwangbo, D.Y. Yi and M.K. Han; "The Space Charge Effect on PD and Dielectric Barrier Discharge in XLPE under High AC Voltages"; IEEE Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Vol. 1, pp.145-148; 2000.



## **Abstract**

In this experimental work, we evaluated the effect of corona discharge on the properties of insulating solids, in particular PMMA. Electrical aging tests were performed and degradation of the polymer surface was studied and analyzed using several techniques. The degraded surface of PMMA was observed using SEM, EDX, AFM and FTIR analyzes. In addition, to study the behavior of the insulator before and after its exposure to electric discharges, the measurement of relative permittivity, dissipation factor and dielectric loss index were carried out and the characteristics of the current pulses associated with surface discharges as well as the ability of the sample to trap the charge under electron irradiation were evaluated. The results obtained show that the corona discharge causes attenuation of the performance of the insulating solid. Thus, an evolution of the dielectric properties, a structural changes and a deterioration of the surface morphology with the electrical aging were noticed.

**Key words:** Corona discharge, insulating solids, polymethyl methacrylate (PMMA), electrical aging, surface degradation, dielectric properties, discharge current.

## **Résumé**

Dans ce travail expérimental, nous avons traité l'effet de la décharge couronne sur les propriétés des solides isolants, en particulier le PMMA. Des tests de vieillissement électrique ont été réalisés et la dégradation de la surface du polymère a été étudiée et analysée en utilisant plusieurs techniques. La surface dégradée du PMMA a été observée en utilisant des analyses MEB, EDX, AFM et FTIR. En outre, pour étudier le comportement de l'isolant avant et après son exposition aux décharges électriques, nous avons mesuré sa permittivité relative, son facteur de dissipation et son indice de pertes diélectriques. Les caractéristiques des impulsions de courant associées aux décharges de surface ainsi que la capacité qu'a l'échantillon à piéger la charge sous irradiation électronique ont été évaluées. Les résultats obtenus montrent que la décharge couronne provoque une atténuation des performances du solide isolant. Ainsi, une évolution des propriétés diélectriques, des changements structuraux et une détérioration de la morphologie de surface avec le vieillissement ont été remarquées.

**Mots-clés :** Décharge couronne - solides isolants - polyméthacrylate de méthyle (PMMA) - vieillissement électrique - Dégradation surfacique - Propriétés diélectriques - Courant de décharge.