

**REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE**  
**MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE**  
**UNIVERSITE MOULOU D MAMMERRI DE TIZI-OUZOU**



**Faculté de Génie Electrique et d'Informatique**

**Département d'Electrotechnique**

**Mémoire de Master en électrotechnique**

**Option : Réseaux Electriques**

Présenté par :

**CHIBANE Yacine**

**BADJA Bilal**

**Thème**

**Effets du vieillissement thermique sur les caractéristiques du  
polyéthylène basse densité (PEBD)**

Devant le jury composé de :

**M Djafar BOUGUEDAD**

Maitre de conférences A, UMMTO, president

**M Abdallah HEDIR**

Maitre de conférences B, Encadreur

**M Ferhat SLIMANI**

Doctorant, UMMTO, Co-Encadreur

**M Mustapha MOUDOUD**

Maitre de conférences A, UMMTO, Examineur

**M Farid NAMANI**

Maitre assistant A, UMMTO, Examineur

Soutenu le : 11/07/2018

# Remerciements

*Avant tout je tiens à remercier DIEU qui m'a arrosé de la lumière de sa connaissance et m'a protégé de l'ignorance.*

*Nos profondes gratitudes adressées à notre encadreur Mr **M.MOUDOUD** pour son encadrement, sa disponibilité, sa compétence, son dévouement et de ses conseils judicieux qui nous ont été un grand soutien moral et qui nous ont amené à réaliser ce travail.*

*On tient à remercier notre co-encadreur Mr **F.SLIMANI** pour toutes les explications, les conseils et les informations pour réaliser ce modeste travail.*

*Nos plus vifs remerciements s'adressent à Mr **A. HEDIR** pour ses encouragements et ses conseils judicieux*

*On tient à exprimer nos sincères remerciements et nos profondes gratitudes à Mr **F. BELLABAS** ingénieur au laboratoire de physique pour ses qualités humaine et l'aide précieux qu'il nous a apporté durant notre période de stage à l'entreprise Electro-Industrie d'AZAZGA.*

*On souhaiterait remercier tous ceux avec qui nous avons eu la chance de travailler et qui ont pu nous aider de près ou de loin, en mettant à notre disposition tous les moyens (matériels, compétences et qualités humaines) dont ils disposaient.*

*Merci*

# *DEDICACES*

*Je dédie ce travail :*

*-A mes très chers parents qui ont fait de leurs mieux  
pour que je réussie dans mes  
études.*

*-A ma chère grand-mère.*

*-A mes frères Saïde et sa femme, nourddine et faïcel*

*-A ma sœur cylvia*

*-A tout ma famille.*

*-A tous mes amis.*

*YACINE*

# *DEDICACES*

*Je dédie ce travail :*

*-A mes très chers parents qui ont fait de leurs mieux  
pour que je réussie dans mes  
études.*

*-A mes frères Arezki, Ferhat, Samy*

*-A ma sœur Hanane et sont époux Ahmed*

*-A tout ma famille.*

*-A tous mes amis.*

*Bilal*



# **SOMMAIRE**

# SOMMAIRE

---

Introduction générale.....	1
<b>CHAPITRE I : Généralité sur les polymères</b>	
I.1. Généralités sur les polymères.....	2
I.2. Définition .....	2
I.3. Nomenclature des polymères .....	2
I.4. Classification des polymères .....	3
I.4.1. Selon leur nature chimique .....	3
I.4.2. Selon l'origine .....	3
I.4.3. Selon leur domaine d'application .....	4
I.4.4. Selon leur structure de chaîne (dimensionnalité) .....	4
I.4.5. Selon leur comportement thermique .....	6
I.4.6. Classification selon le comportement physique .....	7
I.4.7. Selon les usages technologiques.....	8
I.4.8. Selon l'importance économique .....	8
I.5. Propriétés des polymères.....	9
I.5.1. Propriétés thermiques .....	9
I.5.2. Propriétés mécaniques .....	9
I.5.3. Propriétés physiques .....	9
I.5.4. Propriétés optiques .....	10
I.5.5. Propriétés électriques.....	10
I.5.6. Propriétés chimiques .....	10
I.6. Applications des polymères .....	10
I.7. Synthèses des polymères.....	11
I.7.1. Polymérisation en chaîne.....	12
I.7.2. Polymérisation par étapes.....	12
<b>CHAPITRE II : Vieillessement thermique des isolants solides</b>	
II. Vieillessement thermique des polymères .....	14
II.1. Vieillessement physique .....	14
II.1.1. Vieillessement physique Sans transfert de masse .....	14
II.1.1.1. Vieillessement par relaxation de volume et d'enthalpie .....	14
II.1.1.2. Vieillessement par chocs thermiques .....	14
II.1.1.3. Fissuration sous contrainte en milieu tensioactif.....	15
II.1.2. Vieillessement physique Avec transfert de masse .....	15

# SOMMAIRE

---

II.1.2.1. Vieillessement par absorption de solvants .....	15
II.1.2.2. Perte d'adjuvants .....	16
II.1.3. Influence du vieillissement physique sur les propriétés du polymère .....	17
II.2. Vieillessement chimique .....	17
II.2.1 Oxydation .....	18
II.2.2. Réticulation.....	18
II.2.3. Dépolymérisation.....	19
II.2.4. Coupure de chaînes statistiques .....	19
II.3. Endurance thermique des isolants solides .....	20
II.3.1. Principe de la détermination de l'endurance thermique des isolants solides .....	20
II.3.2. Choix des températures de vieillissement .....	22
II.3.3. Durée de vie.....	22
II.3.4. Vitesse de dégradation.....	23
 <b>CHAPITRE III : Techniques expérimentales</b>	
III.1. Le Polyéthylène (PE).....	25
III.1.1. Polyéthylène basse densité (PEBD).....	25
III.1.2. Propriétés du PEBD .....	25
III.2. Préparation des Echantillons .....	27
III.2.1. Découpage des éprouvettes.....	27
III.3. Dispositifs expérimentaux .....	28
III.3.1. Vieillessement thermique .....	28
III.3.2. Conditionnement des éprouvettes .....	28
III.3.3. Dispositifs utilisés pour les essais électriques .....	29
a. Le LCR mètre .....	29
b. Le Spintermètre (un générateur de haute tension) .....	29
III.3.4. Dispositif pour les essais mécaniques.....	30
III.4. Mesure de l'épaisseur des éprouvettes .....	31
III.5. Mesure des propriétés de polyéthylène basse densité .....	31
III.5.1. Mesure des propriétés électriques .....	31
III.5.1.1. Mesure de la permittivité relative $\epsilon'$ , facteur de pertes diélectrique $\tan\delta$ et l'indice des pertes diélectriques.....	31
III.5.1.2. Indice des pertes diélectriques.....	32

# SOMMAIRE

---

III.5.1.3. Mesure de la rigidité diélectrique.....	32
III.6. Essais mécaniques .....	32
III.6.1. Mesure de la résistance à la traction .....	32
III.6.2. Mesure de l'allongement à la rupture .....	33

## **CHAPITRE IV : Résultats et discussion**

IV.1. Influence du vieillissement thermique sur les propriétés diélectriques.....	34
IV.1.1. Permittivité relative .....	34
IV.1.1.1. Variation de la permittivité relative en fonction du temps de vieillissement.....	34
IV.1.1.2. Variation de permittivité relative en fonction de la fréquence.....	35
IV.1.2. Facteur de pertes diélectriques .....	35
IV.1.2.1 Variation de facteur de pertes diélectrique en fonction du temps de vieillissement	35
IV.1.2.2 Variation de facteur de pertes diélectrique en fonction de la fréquence .....	36
IV.2. Influence du vieillissement thermique sur les propriétés mécaniques .....	37
IV.2.1. La résistance à la traction .....	37
IV.2.2. Allongement à la rupture .....	38
IV.3. Influence du vieillissement thermique sur les propriétés électriques.....	39
IV.3.1. Rigidité diélectrique.....	39
Conclusion générale.....	41
Bibliographie.....	42



# **Introduction générale**

Depuis leur découverte au début du siècle dernier, le domaine des isolants organiques solides n'a cessé d'évoluer. Ces matériaux peu onéreux et facilement recyclables [1] sont utilisés dans plusieurs domaines qui s'étendent de la microélectronique à l'industrie aéronautique et spatiale en passant par la médecine. Vu leurs excellentes propriétés isolantes, leur grande résistance aux attaques chimiques et leurs bonnes caractéristiques mécaniques [2], le domaine du Génie Electrique leur accorde actuellement de plus en plus d'investigation. En effet, la plupart des technologies dépendantes de l'énergie électrique sont soumises à des contraintes de vieillissement qui conditionnent la fiabilité des systèmes électrique [3].

La fonction d'isolation est primordiale, du fait, qu'elle est l'une des conditions fondamentales du fonctionnement des matériels de production, de transport et de distribution d'énergie électrique.

Un grand nombre de facteurs agissent plus au moins directement et influent sur la durée de vie des polymères. On distingue habituellement le vieillissement qui est lié essentiellement à l'instabilité des états thermodynamiques du matériau polymère. Les phénomènes de vieillissement ont des origines très diverses. Nous pouvons recenser des contraintes « classiques » de type électrique, thermique, ou mécanique, mais également des plus difficile à cerner comme l'humidité, la présence anormale d'un type de molécules (impuretés) ou encore l'existence des irradiations. Le vieillissement thermique peut avoir comme conséquences une dégradation des propriétés mécaniques, des propriétés électriques ainsi qu'une influence sur les propriétés physiques comme par exemple rétrécissement du matériau ou un changement de couleur et une perte de masse [4].

Notre présent travail, traite l'effet de la contrainte thermique sur le polyéthylène basse densité, utilisé comme isolant dans les câbles de moyenne et de haute tension. Ce travail traite l'effet du vieillissement thermique sur les propriétés : facteur des pertes diélectriques, permittivité relative, rigidité diélectrique, allongement à la rupture et résistance à la traction. Les essais de vieillissement ont été réalisés au niveau du Laboratoire de Génie Electrique de l'Université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou. Quant aux expériences de claquage électrique et d'essai de traction, elles ont été effectuées au Laboratoire de Physique de l'entreprise Electro-industries sise à AZAZGA. Le reste des essais diélectriques, à savoir la mesure du facteur de dissipation diélectrique, la permittivité relative a été réalisé au niveau du Laboratoire haute tension de l'Université UMMTO.

Ce travail est devisé en quatre parties :

Le premier chapitre est consacré aux généralités sur les polymères, ainsi que la présentation du matériau polymère faisant l'objet de ce mémoire à savoir le polyéthylène basse densité.

Le deuxième chapitre à pour objectif la description des effets du vieillissement thermique sur les polymères.

Dans le troisième chapitre, nous expliquons les techniques expérimentales ainsi les dispositifs utilisés dans le cadre de ce travail.

Dans le quatrième chapitre, nous présentons les résultats expérimentaux obtenus lors des essais et des interprétations.

Enfin, nous terminons notre travail par une conclusion.

# **CHAPITRE I**

**Généralité sur les polymères**

Les premiers polymères entièrement synthétiques, la Bakélite, a été synthétisé la première fois en 1900 par L.Baekeland. Il faut attendre 1922 pour que H.Staudinger découvre que les polymères étaient des macromolécules composées d'unités monomériques liées entre elles par des liaisons covalentes. Il existe des polymères naturels comme l'ambre, l'ADN et les protéines. Le développement industriel de la science macromoléculaire a été accéléré par la seconde guerre mondiale et a connu une très forte évolution depuis les années 60. Il existe actuellement plusieurs centaines de polymères différents et leur domaine d'application s'étend de la microélectronique à la médecine en passant par l'aéronautique et spatial.

Les matériaux polymères sont généralement utilisés pour leurs propriétés mécaniques particulières et leur aptitude à être mis en œuvre. Ces qualités sont étroitement liées à leur structure et il est possible, à partir d'une structure moléculaire donnée, d'imaginer la morphologie qui en découle et les propriétés qui s'y rattachent. Ce chapitre a pour objet une présentation des principales généralités sur les polymères.

### I.1. Généralités sur les polymères

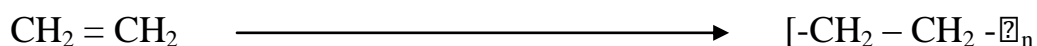
Ce n'est que dans les années 1920 que la notion de macromolécule a commencé à être largement acceptée par la communauté scientifique. Herman Staudinger, professeur de chimie à l'Ecole polytechnique fédérale de Zurich entre 1912 et 1926, ensuite professeur à Fribourg-en-Brisgau et notamment Prix Nobel de chimie en 1953, en a été l'un des principaux artisans.

Il a démontré que les matières polymères comme la cellulose, la soie et le caoutchouc étaient formées de longues chaînes moléculaires, qualifiées de macromolécules. Cette idée a ouvert la voie à une recherche plus systématique, tant chimique que physique, sur la synthèse, la structure et le comportement des polymères solides.

### I.2. Définition

Le mot «polymère» vient du grec «poly» signifiant plusieurs et «meros» parties ou unités. En effet, un matériau macromoléculaire ou polymère est constitué de longues chaînes où les unités de répétition sont toutes les mêmes (homopolymère) ou de nature différente (copolymère). La cohésion des atomes sur une même chaîne est assurée par des liaisons chimiques fortes, tandis que les liaisons inter chaînes sont plus faibles. La présence de liaisons faibles et fortes apporte aux matériaux polymères des propriétés physicochimiques particulières [5].

L'exemple suivant présente la formation du polyéthylène par polymérisation des monomères de l'éthylène.



### I.3. Nomenclature des polymères

Le nom des polymères est généralement dérivé de celui du monomère en ajoutant le préfixe "poly". Pour le nom du monomère : il est formé de plusieurs mots, il est mis entre parenthèses et précédé de poly (préfixe).

### Exemples

- poly (chlorure de vinyle).  
Pour le copolymère, on utilise un unfixe pour décrire ce que l'on connaît de l'agencement des unités constitutives. Ils sont désignés par : le polymère alterné.
- Poly [styrène-Co-(méthacrylate de méthyle)].  
Généralement, les polymères sont très utilisés dans les matières plastiques, les fibres, élastomères, peintures, adhésifs,... etc.

## I. 4. Classification des polymères

Il existe plusieurs modes de classification des polymères que peuvent être classés selon divers critères :

### I.4.1. Selon leur nature chimique

On peut classer les polymères, selon leur structure chimique et selon l'évolution de leur permittivité en fonction de la température et de la fréquence, en polymères apolaire et en polymères polaire.

- **Polymères apolaire** : Ils sont généralement de très bons isolants avec un indice de pertes faible, de l'ordre de  $10^{-4}$  à  $10^{-3}$  et une permittivité quasi constante (2,5 à 3) dans un large domaine de température et de fréquence. Ils contiennent, en générale, que de carbone et de l'hydrogène ou bien ils contiennent des atomes électronégatifs tels que le fluor ou le chlore placés symétriquement le long de la chaîne carbonée. Parmi ces polymères on trouve le polypropylène, polyéthylène et, polystyrène [6].
- **Polymères polaire** : Ils possèdent dans leurs molécules des atomes (généralement électronégatifs tels que **F, Cl, O, N**) qui fournissent des dipôles. Ils ont une permittivité élevée (3,5 à 10) et un indice de pertes élevé ( $10^{-2}$  à 10). On trouve, le polychlorure de vinyle, poly fluorure de vinylidène, le poly méthacrylate de méthyle, les polycondensats tels que les polyamides ou les polyesters thermoplastiques et le polyéthylène téréphtalate [6].

### I.4.2. Selon l'origine

On distingue les polymères naturels, les polymères Artificiels et les polymères Synthétiques :

- **Les polymères naturels**

Issus des règnes végétal, animal ou minéral leur économique et le rôle qu'ils jouent dans les mécanismes vitaux leur à assuré une place de premier choix depuis une trentaine d'années [7].

### Exemples

- Les polysaccharides (cellulose, amidon ...etc) ;
- Les protéines (la laine, la soie...ect) ;

- Le caoutchouc naturel ...etc).

➤ **Les polymères artificiels : (dérivés des polymères naturels)**

Sont obtenue par modification chimique de polymères naturels de façon à transformer certaines de leurs propriétés.

**Exemples**

- Les esters cellulosiques (nitrocellulose, acétate de cellulose ...etc.) ;
- ébonite (caoutchouc fortement réticulé par le soufre) [7].

➤ **Les polymères synthétiques**

Les molécules monomères qui permettent de les obtenir n'existent pas dans la nature. Cependant, on peut remarquer que les structures réalisées par synthèse sont souvent proches de celles des polymères naturels [7].

**I.4.3. Selon leur domaine d'application**

Les polymères sont répartis en 3 grandes catégories :

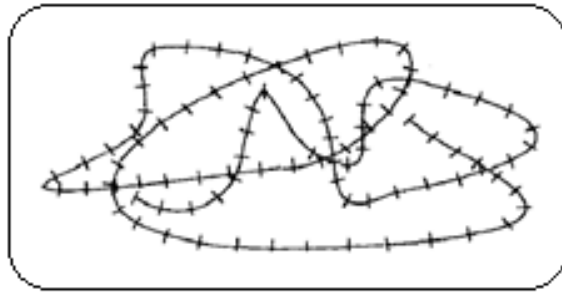
- **Les polymères de grande diffusion** : Encore appelés polymères de commodité, dont la production annuelle s'évalue par millions de tonnes, sont devenus d'un emploi quotidien pour tous. Le polyéthylène, le polystyrène, le poly (chlorure de vinyle) et quelques autres sont à classer dans cette catégorie d'une importance économique considérable [8].
- **Les polymères techniques** : Ont des caractéristique qui leur permettent de se substituer, de plus en plus aux matériaux traditionnels (métaux, céramiques...etc) pour nombreuses application ; les polyamides, les poly acétylènes... etc font partie de cette famille [8].
- **Les polymères spéciaux** : Ou polymères de fonction Présentent généralement une propriété qui induit leur utilisation pour une application particulière. C'est dans cette catégorie que se trouvent les polymères conducteurs, photo actifs, thermostables, adhésifs,... etc [8].

**I.4.4. Selon leur structure de chaine (dimensionnalité)**

Les polymères peuvent encore être classés en trois catégories :

➤ **Polymères linéaires ou monodimensionnels**

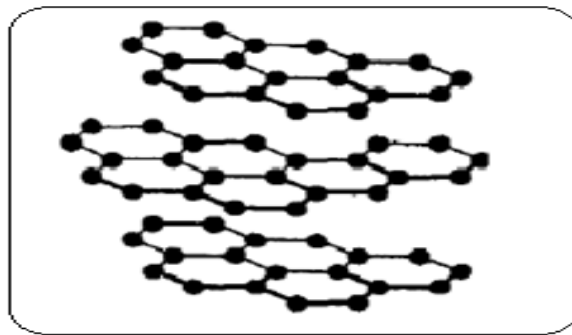
Pour lesquels, chaque chaine macromoléculaire est constituée d'un nombre (éventuellement) élevé mais fini d'unités monomères ; de tels systèmes correspondent à la polymérisation de monomères bivalents et une macromolécule linéaire peut être très schématiquement représentée par un trait continu divisé en intervalles figurant chacun une unité monomère (Fig. I.1) [8] chaines polymères est constitué de longueur variable, propriété désignée par le terme poly molécularité.



**Fig. I.1** : Représentation de la chaîne d'un polymère linéaire [8].

➤ **Polymères bidimensionnels**

Dont certains peuvent être produits par la nature (carbone graphite, kératine...etc) ; dans le domaine des polymères synthétiques ce sont encore des curiosités de laboratoire.ils se présentent sous la forme de feuillets bidimensionnels, d'épaisseur comparable à celle des molécules simples (Fig. I.2) [8].



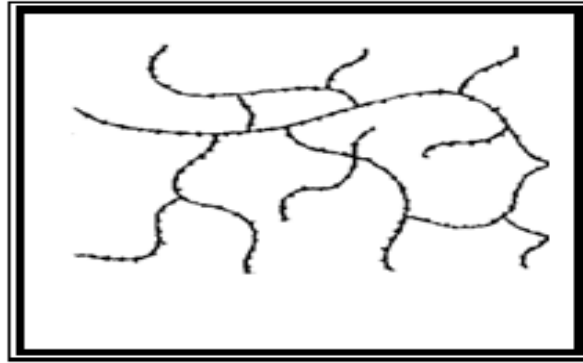
**Fig. I.2** : Représentation schématique d'un polymère Bidimensionnel [8].

➤ **Polymères tridimensionnels**

Qui résultent de la polymérisation de monomères dont la valence moyenne est supérieure à deux ou encore de la réticulation (formation d'un réseau tridimensionnels), par voie physique ou chimique, de polymères linéaires [8].

Leur dimension moléculaire peut être considérée comme infini puisque toutes les unités monomères constituées d'un objet sont liées de façon covalente pour former une seul macromolécule.

Les liaisons se développent dans les trois dimensions et un élément de volume d'un tel peut été représenté sur la (fig. I.3) [8].



**Fig. I.3 :** Représentation schématique d'un polymère Tridimensionnel [8].

#### **I.4.5. Selon leur comportement thermique**

Les propriétés des polymères permettent des usages très variés. On peut ainsi les regrouper en quatre familles :

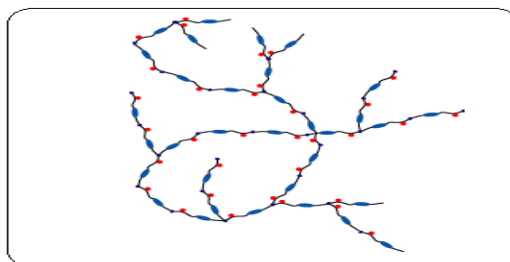
- Les thermoplastiques ;
- Les thermodurcissables ;
- Les élastomères ;
- Les élastomères thermoplastiques.

Tous ces polymères peuvent être des homopolymères ou des copolymères et peuvent être obtenus par polymérisation (polymérisation en chaîne ou polycondensation). Ils se différencient par l'architecture de leurs macromolécules (linéaire, ramifié ou réseau tridimensionnel), par leur mise en œuvre plus ou moins aisée et par leur propriété d'élasticité [8, 9].

##### **a. Les thermoplastiques**

Un thermoplastique est un polymère linéaire ou ramifié pouvant être ramolli par chauffage et durci par refroidissement dans un intervalle de température spécifique. Ces polymères peuvent cristalliser thermoplastes amorphes ou thermoplastes semi-cristallins comme le polyéthylène (PE), le poly (chlorure de vinyle) (PVC) ou le polystyrène (PS) sont mis en forme par diverses techniques comme l'injection, l'injection-soufflage, l'extrusion ou le roto moulage. (Figure I.4).

Dans la majorité des cas, le polymère ayant la forme désirée récupère son état partiellement cristallin ou amorphe après refroidissement [10].



**Fig. I.4 :** Représentation schématique d'un polymère thermoplastique [10].

### **b. Les thermodurcissables**

Un thermodurcissable est un produit (poudre à mouler solide ou résine liquide) transformé irréversiblement par polymérisation en un réseau tridimensionnel infusible et insoluble que l'on qualifie de thermo durci.

Il est souvent d'usage, dans l'industrie, d'employer abusivement le terme thermodurcissable pour désigner à la fois le système réactif initial, soluble et fusible et le produit final et infusible.

Le réactif initial peut être composé d'un monomère ou d'un mélange de monomères (résines aminoplastes et phénoplastes, silicone,...etc) ou plus fréquemment d'un mélange de polymère linéaire de faible masse molaire et de monomère (résine époxy, résines polyesters insaturés,...etc) [6].

Dans tous les cas, la réticulation s'effectue sous l'action de la chaleur et / ou de catalyseurs. Ces polymères amorphes ont une température de transition vitreuse élevée (80 °C à + de 150 °C) mais, du fait de la réticulation, ne présentent pas d'état caoutchouteux ni d'état liquide.

La mise en œuvre des thermodurcissables est donc moins aisée que celle des thermoplastiques car il faut impérativement effectuer la mise en forme en même temps que la réaction chimique de réticulation. Cependant, les thermodurcissables présentent une résistance mécanique, chimique et thermique plus élevées que les thermoplastiques [10].

### **c. Les élastomères**

Ces polymères présentent les mêmes qualités élastiques que le caoutchouc, un élastomère au repos est constitué de longues chaînes moléculaires repliées sur elles même, sous l'action d'une contrainte, les molécules peuvent glisser les unes par rapport aux autres et se déformer.

### **d. Les élastomères thermoplastiques**

Un élastomère thermoplastique est un polymère linéaire ou ramifié présentant les propriétés d'élasticité de caoutchouc d'un élastomère et de facilité de mise en œuvre d'un thermoplastique.

Les élastomères thermoplastiques sont souvent des copolymères à blocs (ou des mélanges d'homopolymères et /ou copolymère) dont la structure à l'état solide résulte toujours de l'association d'au moins deux phases distinctes non miscibles :

- Une phase souple (température de transition vitreuse comprise entre 40 °C et 90 °C) associée à une phase rigide (température de transition vitreuse ou température de fusion supérieure à 90 °C). C'est donc un matériau multi phase ou la phase rigide est dispersée dans la phase souple [9].

### **I.4.6. Classification selon le comportement physique**

En fonction de la structure physique des polymères, on peut les classer en quatre types d'état :

- L'état amorphe, dans lequel les arrangements moléculaires n'ont pas d'ordre prédéfini. Les macromolécules ont enchevêtrées en pelotes. Cette absence d'ordre engendre une absence de point de fusion, l'existence d'une température de transition vitreuse qui marque le passage d'un état vitreux (où le matériau se comporte comme un verre, c'est-à-dire dur et cassant) à un état de caoutchouc (où les chaînes peuvent glisser plus facilement), ainsi qu'une transparence dans le visible comme cela est le cas du polystyrène « cristal » ou du poly (chlorure de vinyle) « cristal » qui sont tous deux amorphes.
- L'état amorphe orienté, où les arrangements moléculaires sont tous orientés dans la même direction.
- L'état cristallin, caractérisé par un arrangement organisé des molécules. Les chaînes s'organisent de façon ordonnée et compacte. Le cristal polymère est décrit par son réseau et son motif. Le réseau caractérise la périodicité dans les trois directions de l'espace. Les principales caractéristiques de l'état cristallin sont une compacité supérieure à celle de la phase amorphe, l'existence d'un point de fusion et l'absence de transition vitreuse, une rigidité supérieure à celle de la phase amorphe.
- L'état semi cristallin, qui associe à la fois un arrangement organisé et des zones amorphes.

#### I.4.7. Selon les usages technologiques

On peut distinguer :

- Les fibres synthétiques (nylon, tergal) ou naturelles (coton, soie) ;
- Les plastiques : ce sont les plastiques au sens large, regroupant les thermodurcissables et les thermoplastiques ;
- Elastomères : Doués de propriétés élastiques et / ou caoutchouteuse ;
- Caoutchoucs synthétiques : polymères du butadiène de l'isoprène chloroprène ;
- -Caoutchoucs naturels [11].

#### I.4.8. Selon l'importance économique

Pour les polymères, comme pour tous produits industriels, il existe une corrélation entre le tonnage et le prix, ceci permet de distinguer trois grandes catégories de polymères commerciaux :

- Les polymères de grande diffusion : dont le volume des ventes et de produit est élevé et dont le prix est faible. Polyéthylène(PE), Polypropylène(PP), polystyrène (PS), Polychlorure de vinyle (PVC).
- Les polymères à hautes performances : dont le volume des ventes est le plus faible et les prix les plus élevés.
- Les polymères techniques : dont le volume et le prix sont intermédiaires entre les deux catégories précédentes, comme les polyamides et le Polyéthylène [12].

### I.5. Propriétés des polymères

Avant tout, rappelons qu'il existe une grande variété de matières plastiques, tout comme il existe un grand nombre d'alliages métalliques, une des caractéristiques physiques générales des polymères est :

Masse volumique : La masse volumique des matières plastiques est peu élevée. La légèreté des polymères est sans aucun doute une des qualités qui a le plus largement contribué à leur diffusion.

En ce qui concerne le rapport (résistance à la traction / masse volumique), certains polymères sont en fait supérieurs aux matériaux métalliques.

La faible masse volumique des plastiques est due au faible poids atomique des principaux atomes de leurs chaînes (principalement l'hydrogène et le carbone).

#### I.5.1. Propriétés thermiques

Les propriétés thermiques des polymères sont, comme les métaux, reliées au coefficient de dilatation linéique et la conductivité thermique. Le coefficient de dilatation linéique est fonction du type de liaisons qui assurent la cohésion de l'ensemble des atomes ou des molécules du matériau, et il est autant plus élevé que l'intensité des liaisons et plus faible. Cette caractéristique rend les matières plastiques intéressantes quand on les utilise comme isolants thermiques (notamment sous forme de mousse) [13].

#### I.5.2. Propriétés mécaniques

La rigidité des polymères n'est pas due à la cohésion qui existe entre tous les atomes constitutifs du matériau ; elle résulte plutôt des interactions secondaires entre les macromolécules que sont les chaînes. Par conséquent, on ne peut plus relier directement le module d'élasticité des polymères à l'énergie de cohésion du matériau, à moins de considérer cette dernière comme l'énergie qui existe dans un ensemble de macromolécules et non pas dans un ensemble d'ions ou d'atomes [14].

Les propriétés mécaniques des polymères dépendent éventuellement de la masse molaire et de la cristallinité, parmi lesquelles nous pouvons citer [14] :

- La résistance à la traction variant de 9 à 23 MPa ;
- L'allongement à la rupture variant de 150% à 1000% ;
- Le module d'élasticité en traction variant de 200 à 500 MPa.

#### I.5.3. Propriétés physiques

Les propriétés physiques des matériaux polymères sont une moyenne de celle des composants quand il s'agit de la masse volumique. Pour le reste, ces matériaux sont souvent inhomogène et il n'y a pas de règle d'addition pour prévoir les propriétés à partir de celles des composants [14].

#### I.5.4. Propriétés optiques

La propriété optique d'intérêt pour la lumière visible est la transparence, c'est-à-dire l'absence de diffusion et d'absorption dans le visible. Certains groupes chimiques absorbent la lumière et une coloration apparaît. Elle passe du jaune au rouge à mesure que la longueur d'onde absorbée croît. L'indice de réfraction dépend de la nature des atomes et des liaisons qui les relient. Comme pour tous les produits organiques, on peut calculer par addition d'incrémentes la réfraction moléculaire R [14].

$$R = (n^2 - 1) M / (n^2 + 2) d \quad \text{I.1}$$

Avec :

n : indice de réfraction ;

M : la masse molaire (de l'ensemble) ;

D : la masse volumique.

#### I.5.5. Propriétés électriques

Les matières plastiques ont une résistivité très élevée (entre  $10^{15}$  à  $10^{18}$   $\Omega \cdot \text{cm}$ ) et constituent par conséquent d'excellents isolants électriques. Cette résistivité peut varier, en surface surtout, avec la prise d'humidité [13]. Les variations du champ électrique alternatif provoquent des mouvements moléculaires et une consommation d'énergie transformée en chaleur et qui se traduit par une perte diélectrique qui dépend de la fréquence élevée sans perforation (claquage) [15].

#### I.5.6. Propriétés chimiques

Le comportement chimique des polymères dépend de leur accessibilité aux agents extérieurs. Sous la chaleur, les thermoplastiques fondent et les thermodurcissables peuvent se décomposer sans fondre mais en émettant des vapeurs ou des liquides inflammables [14]. C'est la nature chimique du polymère et sa réticulation qui prédominent pour la résistance aux agressions chimiques à la température et au gonflement par les solvants.

#### I.6. Applications des polymères

Les polymères constituent une des principales révolutions techniques du XX<sup>ème</sup> siècle. Ceux-ci sont utilisés pour un nombre extraordinaire d'applications à tous les échelons de la vie. (Voir Tableau I.1).

**Tableau I.1** : Les domaines d'application des polymères.

Domaines	Exemples
Le secteur de la construction	Les portes, conduites d'eau et l'assainissement, peinture des murs des plan chaires et des plafonds, revêtement du sol.
Industrie de l'emballage	Bouteilles, pots de yaourt, boîtes aux lettres, problème thermique, gainage films vidéo.
Médecine et santé	Poches de sang, gants, lentilles, verres de lunettes, les organes artificiels, Seringues, industrie dentaire, prothèses, outils de chirurgie
Articles ménagers	Tupperware, poubelles, seaux, vaisselle
Matériel électrique et électronique et les communications	Tension d'isolement, isolation, laveuses, ordinateurs et les caméras, Radio et télévision, téléphone.
Industrie automobile	Système vitre claire, Tapie, carrosserie, optiques, planches de bord, habillage intérieur, Façades de téléviseurs, gainage de câbles.
Industrie textile	Vêtement, fibres textiles naturelles et synthétiques, sacs, skaï, similicuir, non tissés.
Dans le domaine agricole	Colles, vernis, mousses.
Sports-loisirs	Certaines parties des bâtiments, des avions et des bateaux, DVD, bandes magnétiques, Files de pêche et les cordons utilisés, piscines, coques de bateaux
Industrie chimique	Tuyauterie, cuves, revêtements.
Le domaine alimentaire	Procédés de fabrication d'aliments, emballages (bouteilles, pots de yaourt, briques de lait, boîtes à œufs) ou industriel (flacons de détergent, sachets et sacs, casiers...etc).
Le matériel de maison	Meuble, vaisselle, accessoires...etc, (Utilisés en industrie pour maintenir le matériel d'une violente collision).

### I.7. Synthèses des polymères

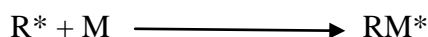
La réaction chimique, ou le procédé, permettant la synthèse de polymères à partir de molécules réactive qui peuvent être des monomères est dite polymérisation. On distingue deux types de réaction chimiques qui permettent la polymérisation de polymères :

- la polymérisation en chaine (ou polymérisation radicalaire)
- La polymérisation par étapes (ou polycondensation).

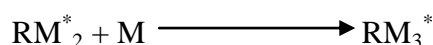
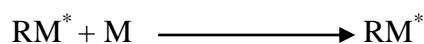
### I.7.1. Polymérisation en chaîne

La polymérisation radicalaire suit un mécanisme de réaction en chaîne. L'espèce active est un radical libre, elle s'applique à un grand nombre de monomères. Cette polymérisation comporte trois étapes essentielles : l'amorçage, la propagation et la terminaison de chaînes [16].

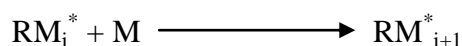
- **Amorçage (ou initiation) :** Décomposition de l'amorceur : la décomposition d'une molécule conduit à des radicaux  $R^*$ . Cette réaction est lente et se produit tout au long de la polymérisation. Les amorceurs comportent une liaison faible susceptible de se rompre sous l'action de la chaleur d'un rayonnement par dissociation homolytique. Il existe deux grandes familles d'amorceurs : les peroxydes (comportant une liaison  $-O-O-$ ) et les azotiques (comportant une liaison  $-N=N-$ ). Ces molécules sont souvent symétriques et produisent alors deux radicaux identiques par dissociation ; addition du radical ( $R^*$ ) sur le monomère  $M$  : cette réaction conduit à la formation du centre actif  $RM^*$ .



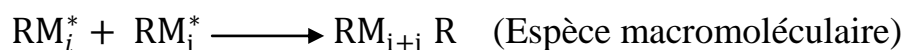
- **Propagation :** La propagation est la séquence des réactions d'addition du monomère  $M$  sur un centre actif  $RM^*$ , conduisant à la croissance de la chaîne macromoléculaire.



-----



- **Terminaison :** Les réactions de terminaison sont celles qui conduisent à la destruction des centres actifs et à la fin des réactions de la croissance des chaînes.



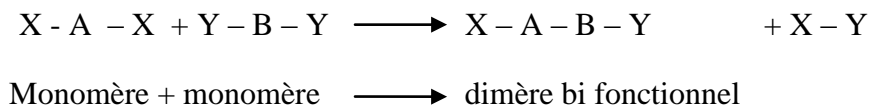
### I.7.2. Polymérisation par étapes

La polymérisation par étape pour laquelle la formation de macromolécule résulte de réaction par étapes, entre les fonctions chimiques réactive portée par les molécules monomères ou polymères. Chaque molécule peut croître par réaction avec n'importe quelle autre molécule (monomère, dimère,...etc)

La formation de macromolécules résulte de réaction successives entre deux fonctions chimiques ( $X, Y...$ ) portées par des molécules comportant au moins deux fonctions chimiques. Les réactions se produisent par simple chauffage ou en présence de catalyseur ; elles s'arrêtent lorsque l'on refroidit le milieu actif ou lorsque l'un des réactifs initiaux est consommé par la réaction chimique [17].

Les réactions qui éliminent a chaque étape des petites molécules comme  $H_2O$  un alcool ou  $HCl...$ , sont appelées réaction de polycondensation.

Les réactions où les monomères réagissent sans élimination de molécules, sont appelées réactions de polyaddition.



Nous avons donné dans ce chapitre quelques généralités sur les polymères isolants utilisés dans le Génie Electrique pour les besoins des dispositifs électriques. Les polymères isolants sont très demandés dans le domaine industriel eu égard à leurs excellentes propriétés électriques, thermiques et mécaniques. La fiabilité des polymères isolants reste toujours un des soucis majeurs de l'électrotechnicien, surtout que ces matériaux sont constamment soumis à des contraintes électriques sévères.

# **CHAPITRE II**

**Vieillissement thermique des isolants solides**

Le vieillissement est défini comme étant une dégradation provoquant un processus irréversible qui entraîne un changement significatif dans la structure du matériau. Le changement est classiquement caractérisé par une perte des propriétés initiale (poids moléculaire, structure moléculaire, résistance à la traction). Les différents mécanismes responsables de la dégradation des polymères peuvent être classés en deux catégories : le vieillissement physique et le vieillissement chimique.

## **II. Vieillissement thermique des polymères**

Le vieillissement thermique peut faire intervenir des phénomènes purement physiques (dégazage, migration de plastifiants, évolutions de la morphologie), ou chimiques parmi lesquels l'oxydation par l'oxygène atmosphérique, qui joue un rôle prépondérant. Ces phénomènes peuvent affecter la structure chimique du polymère, ou dans certains cas, concerner seulement les additifs (problèmes d'incompatibilité d'adjuvants) [18, 19].

### **II.1. Vieillissement physique**

Le vieillissement physique au sens large englobe tous les phénomènes dans lesquels la structure chimique des macromolécules et autres constituants du polymère n'est pas modifiée [20, 21]. Pour les matériaux à constitution unique (comme PE, PRC,...etc), un certain nombre de processus physiques peuvent affecter leurs propriétés. Cela peut comprendre le ramollissement du matériau au-delà de sa température de transition vitreuse ou au-delà du point de fusion de sa partie cristalline [22]. Le processus physique peut résulter :

- Des modifications de la configuration spatiale des macromolécules (cristallisation secondaire, relaxation,...etc) ;
- Des phénomènes de surface (fissuration en milieu tensioactif) ;
- Des phénomènes de transport (pénétration de solvants, migration d'adjuvants).

Nous pouvons distinguer deux grandes catégories de phénomènes selon qu'ils impliquent ou non un transfert de masse.

#### **II.1.1. Vieillissement physique Sans transfert de masse**

##### **II.1.1.1. Vieillissement par relaxation de volume et d'enthalpie**

Les variations de volume et d'enthalpie sont en fait deux aspects différents (mais parallèles) d'un même phénomène d'évolution de la configuration du réseau macromoléculaire à l'état vitreux [23]. Il s'agit en fait d'un phénomène lié à l'instabilité propre du matériau amorphe au-dessous de sa température de transition vitreuse. Dans les polymères semi-cristallins (PE, PP,...etc), certains segments stéréo réguliers (donc capables de cristalliser) qui se trouvaient piégés dans la phase amorphe, vont progressivement diffuser et s'incorporer à des zones cristallines. Le vieillissement se traduit par une diminution du taux de cristallinité [20].

##### **II.1.1.2. Vieillissement par chocs thermiques**

Les chocs thermiques peuvent entraîner des ruptures mécaniques induites par dilatation différentielle. Deux mécanismes sont susceptibles d'intervenir :

### **a. Gradient de température dans l'épaisseur**

Les matériaux organiques sont, sauf cas particuliers, des isolants thermiques. Lorsque la température du milieu varie rapidement, un gradient de température s'instaure dans l'épaisseur du matériau d'où la dilatation différentielle zone superficielle – zone interne. Dans le cas d'un choc thermique de grande amplitude, une seule excursion en température peut entraîner la rupture. Dans le cas de cycles de plus faibles amplitudes, l'endommagement peut intervenir à long terme, le matériau étant sollicité en fatigue [21, 23].

### **b. Matériau hétérogènes**

Dans les matériaux composites, soumis à des variations de température, les dilatations différentielles entraînent des contraintes internes susceptibles d'endommager le matériau. Il s'agit d'un phénomène de fatigue mécanique. La dilatation superficielle est alors due à la différence de coefficient de dilatation des phases en présence [20, 21].

#### **II.1.1.3. Fissuration sous contrainte en milieu tensioactif**

En milieu tensioactif, les polymères sont le siège de fissurations dans les zones les plus contraintes et ceci après un temps pouvant varier entre quelques minutes et quelques jours, selon les conditions et la qualité des polymères. Le phénomène de fissuration est lié au développement de forces de tension superficielles à l'interface polymère-liquide. Il dépend de plusieurs paramètres à savoir la contrainte mécanique, la température et le tensioactif du liquide dont la viscosité détermine la vitesse de pénétration dans les fissures. Aux paramètres extérieurs, s'ajoutent les paramètres interne ; nous pouvons citer : la structure du polymère, la distribution des masses moléculaires et la morphologie du polymère (distribution de tailles de cristallites) [20].

#### **II.1.2. Vieillessement physique Avec transfert de masse**

Nous avons distingué deux grandes catégories de phénomènes selon qu'il y a un transfert de petites molécules du matériau vers l'environnement (pertes d'adjuvants) ou de l'environnement vers le matériau (absorption de solvants).

##### **II.1.2.1. Vieillessement par absorption de solvants**

Si une espèce de faible masse moléculaire (vapeur, liquide) se rencontre dans l'environnement et présente une solubilité non nulle, on constate qu'elle va pénétrer dans le polymère. Le solvant le plus courant est évidemment l'eau, qui peut poser des problèmes parce que les matériaux ne sont pas totalement hydrophobes [24]. Le solvant pénètre dans le polymère selon une loi de diffusion qui peut varier selon le cas étudié. Deux cas se présentent :

##### **a. Le solvant n'induit pas de modification de la structure du polymère**

Sa concentration tend vers une limite correspondant à la saturation (limite de la solubilité), qui dépend dans le cas d'un environnement gazeux, de la pression partielle du solvant dans l'atmosphère.

**b. Le solvant induit une modification de la structure du polymère ou de sa morphologie (fissuration liée à un gonflement différentiel)**

Dans ce cas, on peut observer une variation continue de la concentration en solvant. La pénétration du solvant dans un polymère est influencée par les facteurs suivants :

- La structure chimique du motif structural élémentaire : c'est elle qui détermine essentiellement l'affinité du polymère pour le solvant considéré.
- La morphologie : les zones cristallines peuvent être considérées comme imperméables. La solubilité globale décroît donc avec le taux de cristallinité. Dans les polymères amorphes, l'état de gélification, qui détermine la compacité du réseau macromoléculaire, joue également un rôle important.
- Le taux de réticulation : la pénétration de solvant est d'autant plus aisée que le taux de réticulation est faible. Cette pénétration a pour conséquences, la plastification qui se traduit par une diminution du module d'élasticité, de la contrainte à la rupture, une augmentation de l'allongement à la rupture et la diminution de la température de transition vitreuse [16].

En effet, dans le cas de l'eau, on estime que 1% d'eau diminue cette température de l'ordre de 10 à 20°C (ramollissement du polymère) [24].

**II.1.2.2. Perte d'adjuvants**

Les polymères contiennent souvent des substances organiques de faible masse moléculaire. Des substances peuvent sous l'effet de la température migrer plus ou moins lentement hors du matériau.

La perte de plastifiants par migration peut concerner des quantités relativement importantes, donc affecter de façon non négligeable les propriétés (notamment mécaniques) du matériau.

La vitesse de migration d'un plastifiant est en raison inverse de sa tension de vapeur, qui est elle-même liée dans une certaine mesure à la masse moléculaire.

On observera dans le cas de plastifiants, une diminution de l'allongement à la rupture, une augmentation de la température de transition vitreuse et du module d'Young. Dans le cas de stabilisants, c'est la stabilité chimique qui diminuera. Plusieurs mécanismes sont responsables de la migration des adjuvants ; nous pouvons citer l'évaporation et l'extraction [25].

**a. L'évaporation**

Les molécules du plastifiant se trouvant à la surface peuvent passer dans l'atmosphère, d'où l'existence d'un gradient de concentration dans l'épaisseur du matériau. L'apparition de ce gradient entraîne la diffusion du plastifiant de l'intérieur vers la surface. Le mécanisme entraîne la disparition progressive du plastifiant. Lorsque les adjuvants sont de petites molécules, ils sont susceptibles de s'évaporer et de migrer rapidement hors du polymère. La capacité d'évaporation du plastifiant est intimement liée au poids moléculaire de ce dernier.

La solubilité des adjuvants dans les polymères constitue un facteur important. La masse molaire de l'adjuvant joue également un rôle majeur dans le phénomène de l'évaporation. En

effet, la vitesse de migration et d'évaporation augmente lorsque la masse molaire diminue. La vitesse de perte de plastifiant dépend essentiellement de l'épaisseur du matériau (la vitesse est inversement proportionnelle à l'épaisseur), de la température (la vitesse augmente quand la température augmente), du confinement de l'atmosphère (la vitesse augmente quand le confinement diminue) et de la structure du plastifiant.

Plusieurs études au niveau du laboratoire de haute tension de l'école nationale polytechnique d'Alger (ENP) effectuées sur le polychlorure de vinyle (PVC) ont montré l'affectation des propriétés mécaniques et électriques par le phénomène de migration d'adjuvants. Le phénomène d'évaporation se traduit aussi par une perte de masse [25].

### **b. L'extraction**

Les phénomènes d'extraction sont à prendre en compte dans le cas de contact entre un polymère et un milieu liquide. Ici, c'est la stabilité de l'adjuvant dans le liquide qui est susceptible de jouer le rôle le plus important et qui sera en tout cas le premier paramètre à prendre en compte lors du choix du matériau [25].

### **c. L'exsudation**

L'exsudation n'est que le résultat d'une évolution du matériau vers l'équilibre. Dans certains cas, le mélange (polymère + adjuvants) peut être déstabilisé par un corps tiers provenant de l'environnement [33, 34].

## **II.1.3. Influence du vieillissement physique sur les propriétés du polymère**

Le vieillissement physique sans transfert de masse peut affecter toutes les propriétés dépendant du volume libre et de la mobilité moléculaire. La masse volumique augmente, le coefficient de dilatation et le facteur de pertes diélectriques diminuent [20]. H. St. Onge et S. Péliou [35] ont montré aussi que la rigidité diélectrique dépend de la théorie de volume libre et de la cristallinité qui sont des phénomènes liés au vieillissement physique sans transfert de masse.

## **II.2. Vieillessement chimique**

Par définition, le vieillissement chimique d'un polymère est un phénomène donnant lieu à la modification de la structure chimique des macromolécules [21]. Le vieillissement chimique d'un polymère résulte de son interaction avec le milieu environnant. Il peut être pertinent de classer les différents types de vieillissement chimique en fonction de la nature du paramètre environnemental responsable du processus de dégradation [23]. En pratique, le vieillissement chimique se superpose souvent à un vieillissement physique et les deux phénomènes interfèrent [20]. Nous avons répertorié ici ces différents paramètres (et le type de vieillissement chimique engendré) :

- La température (vieillessement thermique) ;
- Les rayonnements (vieillessement photochimique et radiochimique) ;
- Les agents réactifs (vieillessement chimique en milieu réactif).

- Les organismes vivants (vieillessement biochimique).

Dans le cadre de notre travail, seul le vieillissement chimique causé par la température sera abordé. Les principaux types de réactions intervenant lors de ce vieillissement sont les suivant :

### II.2.1 Oxydation

La cause principale de dégradation reconnue depuis longtemps est l'oxygène, qui s'attaque à la chaîne hydrocarbonée des polymères en entraînant des scissions ou au contraire des ratifications parasites. Ce processus d'oxydation est lent et a pour conséquences, la formation de produits acides qui augmentent la conductivité, ainsi que la coupure des chaînes qui est responsable d'une diminution de la charge de rupture.

L'oxydation est une réaction en chaîne amorcée par la rupture d'une liaison en radicaux libres. Elle se traduit par l'accumulation des groupes tels que OH et CO. L'oxydabilité des matériaux dépend de la solubilité et de la vitesse de diffusion de l'oxygène dans le matériau, mais surtout de la quantité, de la qualité et de la répartition de l'antioxydant incorporé. La dégradation thermo-oxydante des polymères est largement dominée par des coupures de chaînes et la formation de groupes polaires tels que : cétones, aldéhydes, alcools et acides. Les coupures de chaînes entraînent la diminution de la viscosité du polymère et les groupes polaires favorisent la mobilité des porteurs de charges. L'oxydation a pour effet d'introduire des dipôles électriques dans les macromolécules provoquant ainsi une augmentation du facteur de pertes diélectriques et une diminution de la rigidité diélectrique du matériau polymère. D'autres conséquences peuvent être induites lors du processus d'oxydation des polymères ; nous pouvons citer l'apparition de bandes d'absorption diélectriques (augmentation de pertes) et l'abaissement du seuil de température au-delà duquel la dégradation démarre.

La cinétique d'oxydation est fréquemment caractérisée par la présence d'un temps d'induction pendant lequel les propriétés évoluent peu. Ce temps d'induction augmente avec les performances du système d'antioxydant. La détection de l'oxydation s'effectue par des essais physico-chimiques tels que la Spectroscopie Infrarouge à Transformée de Fourier (IRTF), qui permet d'identifier les produits de décomposition. La stabilité à l'oxydation des matériaux polymères est évaluée par le temps d'induction de l'oxydation. L'énergie d'activation liée à l'oxydation thermique varie linéairement avec l'antioxydant contenu dans le matériau [25].

### II.2.2. Réticulation

Le processus de réticulation est caractérisé par la formation de ponts covalents entre les segments de chaînes voisines, qui réduit la souplesse de l'isolant et son aptitude à l'allongement, ce qui a pour effet de le rendre cassant.

Dans le cas des polymères linéaires de taux de réticulation modérés, la réticulation se traduit par l'apparition de chaînes plus ramifiées et de masse moléculaire plus élevée que les chaînes initiales. Le polymère perd partiellement sa solubilité dans les polymères de taux de réticulation élevés.

Dans le cas des polymères tridimensionnels, la réticulation se traduit par une augmentation de la concentration en nœuds de réseau (diminution de la masse moyenne). Elle s'accompagne

d'une diminution du taux de gonflement et une augmentation de la température de transition vitreuse  $T_v$  et du module d'élasticité. Les propriétés physiques du matériau sont peu affectées à

part la solubilité qui diminue. Au plan des propriétés mécaniques, la réticulation conduit à une augmentation du module d'élasticité, de la contrainte à la rupture et de la température de ramollissement.

Dans le cas de polymères initialement linéaires, une réticulation modérée peut également conduire à une augmentation de l'allongement à la rupture. Dans le cas réel de vieillissement, la réticulation est pratiquement toujours accompagnée de coupures de chaînes. En effet, de nombreux polymères tridimensionnels peuvent subir simultanément des coupures de chaînes et une réticulation dans le cas du vieillissement thermique. Leurs propriétés évoluent alors en fonction de la part prise par chacun des processus. La caractérisation du processus de réticulation dans le cas des polymères tridimensionnels se fait en mesurant leur taux de réticulation ou les grandeurs physiques qui leur sont liées ( $T_v$ ) [25].

### II.2.3. Dépolymérisation

La dépolymérisation est un cas particulier de la réaction de coupure de chaînes. Une coupure de chaîne crée un site actif qui déstabilise la liaison monomère voisine et entraîne l'élimination séquentielle de molécules de monomère. La dépolymérisation est d'autant plus facile que l'énergie de liaison monomère-monomère est faible. Elle intervient de façon plus ou moins importante dans les divers types de dégradation. Les phénomènes mis en jeu et les relations qui les régissent présentent une très grande analogie avec ceux relatifs aux polymérisations. Plusieurs réactions interviennent dans le mécanisme de dépolymérisation ; nous les énumérons selon leur ordre de déroulement : amorçage, propagation, transfert et terminaison. Un acte de dépolymérisation conduit à l'élimination d'un fragment moléculaire (monomère) et à une diminution très faible et rapide de la masse moléculaire.

Les réactions de dépolymérisation peuvent prendre naissance même en l'absence d'oxygène. L'évaporation des produits de scissions de plus bas poids moléculaire a pour double conséquence, d'une part un rétrécissement du matériau, d'autre part la formation de produits volatils, susceptible d'être à l'origine de bulles gazeuses, elles-mêmes responsables de décharges partielles dans les isolations à haute tension [25].

### II.2.4. Coupure de chaînes statistiques

Les coupures de chaînes statistiques se produisent sur des sites distribués de manière aléatoire dans le réseau macromoléculaire. Une grande variété de mécanismes chimiques peut être la cause de coupure statistique des chaînes, citons par exemple l'hydrolyse. Il est généralement admis que la dégradation d'un polymère commence toujours par une rupture de liaison (scission primaire). Cette coupure résulte d'un apport d'énergie (chimique, mécanique, photo-ou radiochimique, thermique) à la macromolécule ; lorsque cette énergie est concentrée sur une liaison et qu'elle est supérieure à l'énergie de liaison, la rupture est effective. Le mécanisme de coupure de chaînes statistiques dans les polymères fait intervenir la notion de stabilité thermique. En effet, il existe une corrélation entre l'énergie de dissociation des liaisons

et la stabilité thermique des polymères (la stabilité étant déterminée par la liaison la plus faible). L'énergie de la liaison la plus faible détermine donc dans une large mesure la stabilité globale.

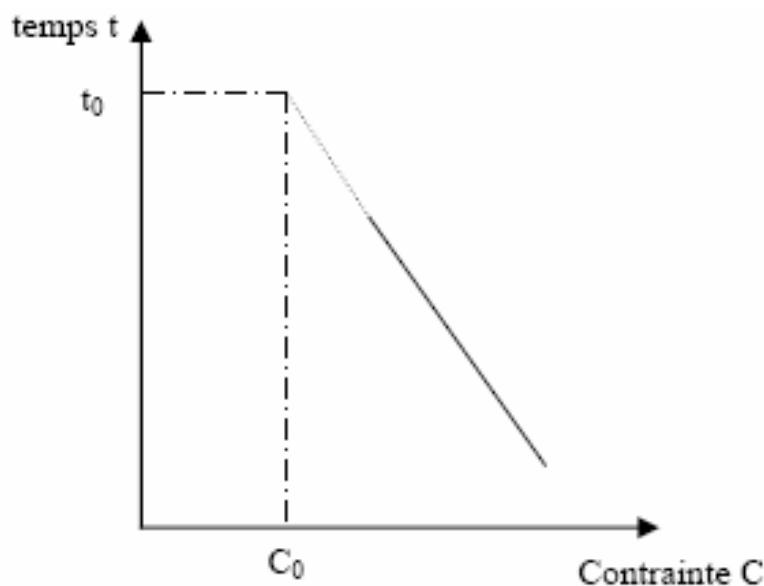
Sur le plan de la structure, ces coupures de chaînes provoquent une diminution de la masse moléculaire moyenne dans le cas des polymères linéaires et une diminution du taux de réticulation dans le cas des polymères tridimensionnels. Les coupures de chaînes affectent considérablement les propriétés mécaniques du matériau [25].

### II.3. Endurance thermique des isolants solides

Certains auteurs comme Fallou [31] et Moraine [32] se sont intéressés à l'étude de l'endurance thermique des polymères. La caractéristique du vieillissement ou la stabilité à long terme des isolants solides doit permettre à répondre à l'une des questions suivantes :

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

La contrainte peut être la température, la tension ou le champ électrique. La figure II-1 montre la variation de la durée d'un matériau en fonction de la contrainte appliquée.



**Figure II.1 :** Durée de vie en fonction de la contrainte appliquée [31].

#### II.3.1. Principe de la détermination de l'endurance thermique des isolants solides

Les travaux relatifs à l'endurance thermique des matériaux isolants solides ont pour objet la mise au point de méthodes générales de détermination de leur stabilité. Le but de ses essais est de simplifier les résultats et de les exploiter sous forme d'indice de température attribuée aux matériaux pour leurs propriétés mécaniques d'une part et pour leurs propriétés électriques d'autre part [33].

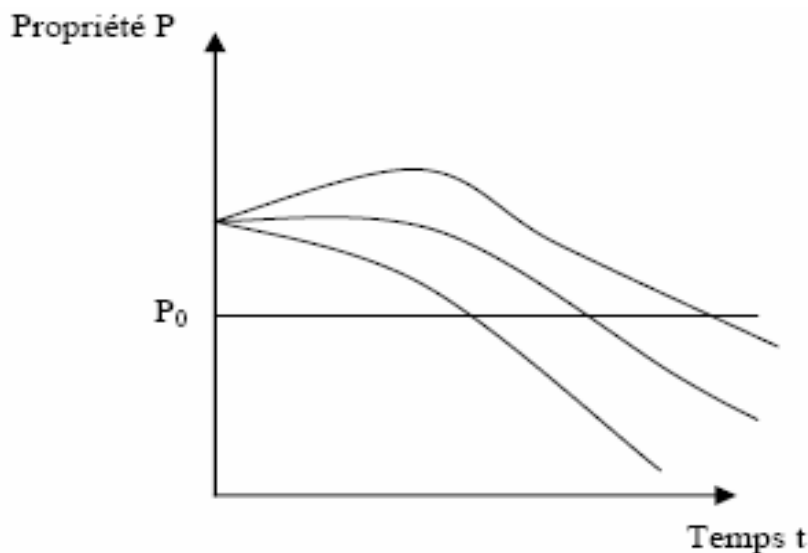
Généralement on détermine les variations d'une propriété du matériau en fonction du temps de vieillissement pour différentes valeurs  $C_1, C_2, C_3, \dots, C_n$  de la contrainte appliquée.

Si l'on fixe une valeur de la propriété  $P_0$  choisie en fonction des critères d'emploi, on obtient la relation  $C(t)$  relative à la propriété  $P_0$ . Cette courbe est appelée courbe du durée se vie.

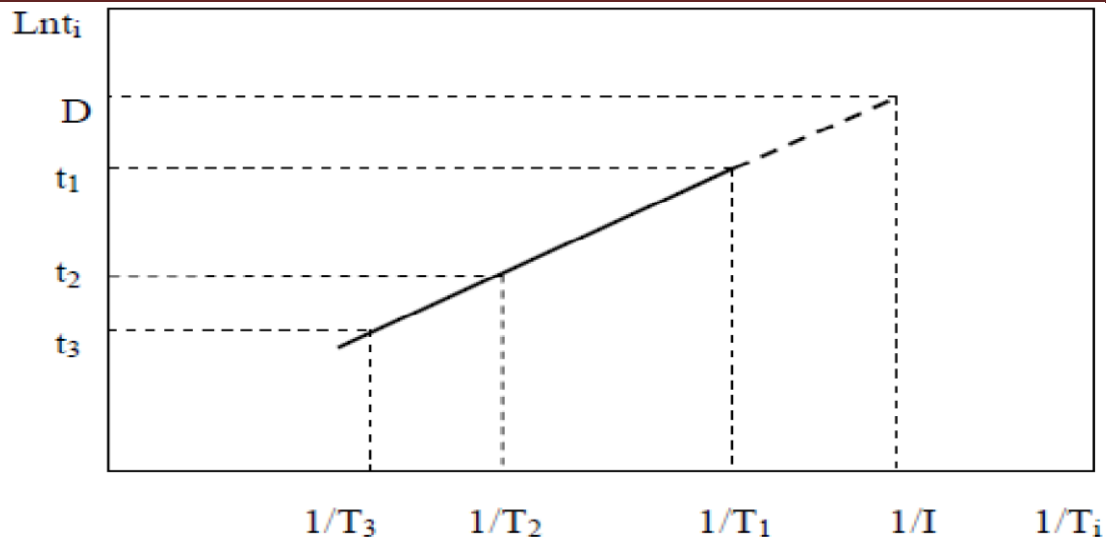
La propriété peut être électrique, (rigidité diélectrique par exemple) ou une propriété mécanique (charge à la rupture).

En ce qui concerne les essais de vieillissement thermique, on soumet les matériaux à l'action prolongée de la chaleur puis on détermine l'évolution d'une ou plusieurs de leurs propriétés en fonction du temps, ce qui permet de tracer les caractéristiques  $P=f(t)$  donnée à figure II.2

Le choix d'une valeur limite de la propriété  $P_0$  permet de déterminer les temps pour lesquels cette limite est atteinte ou durée de vie et ceci pour plusieurs température de vieillissement. En répétant les essais, on peut tracer la courbe d'endurance thermique  $t=f(t)$ , comme le montre la figure II.2



**Figure II.2 :** Variation de  $p$  en fonction du temps de vieillissement pour différentes température  $T$  [31].



**Figure II.3 :** Variation de  $\log(t)$  en fonction de l'inverse de la température absolue  $T$  [42].

Généralement on s'intéresse à l'indice de la température qui est, par définition, le nombre égal à la température exprimée en degré Celsius qui correspond, sur le graphique de l'endurance thermique, à un temps normalement égale à 20 000 heures. Certains chercheurs font des vieillissements très accélérés correspondant à un temps de 500 heures au lieu de 5000 heures soit une division par 10 [31].

### II.3.2. Choix des températures de vieillissement

La norme 216-1 de la commission Electrotechnique Internationale [34] fixe un minimum de trois températures différant chacune de la plus voisine de  $20^\circ \text{C}$  telles que le critère de dégradation soit atteint :

- En un temps inférieur à 100 heures pour la température la plus élevée ;
- En un temps inférieur à 5000 heures pour la température la plus basse.

### II.3.3. Durée de vie

L'effet de la température sur les isolants électriques a été examiné en 1930 par Montsinger qui a présenté une formule empirique décrivant la réduction de la durée de vie pour un accroissement de  $8^\circ \text{C}$  de la température du papier utilisé comme isolant dans les transformateurs [35].

La durée de vie est le temps nécessaire pour qu'une propriété techniquement importante atteigne une valeur limite telle que le matériel puisse encore fonctionner de façon satisfaisante [36]. La durée de vie  $t$  d'un matériau isolant solide en fonction de la température de vieillissement est donnée par une relation de type Arrhenius [37] :

$$Lnt = A + \frac{E}{RT} \quad \text{II.1}$$

Avec :

A : constante caractéristique du matériau ;

R : constante des gaz parfait ( $R=8.314 \text{ J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ) ;

T : Température absolue (K) ;

E : Energie d'activation du phénomène (Kcal/mol).

D'autres auteurs [38, 39] ont proposé une relation analogue à (II.1)

$$t = C \exp\left(\frac{B}{T}\right) \quad \text{II.2}$$

Avec :

C, B : constantes caractéristiques du matériau ;

T : Température absolue (K) ;

t : durée de vie d'un matériau soumis à la contrainte de la température.

La caractéristique  $\ln(t)$  en fonction de  $(1/T)$  est généralement une droite qui, dans certains cas, peut avoir une cassure. D'une manière générale, on peut admettre pour le matériel des durées de vie de 25 à 30 ans pour une utilisation annuelle de 2000 à 7500 h environ [39].

#### II.3.4. Vitesse de dégradation

Les dégradations qui se produisent dans les matériaux isolants et affectent leurs caractéristiques ont pour origine essentielle des réactions chimiques. Aussi est-il logique de retrouver pour l'évolution de ces propriétés des lois analogues à celles qui régissent ces relations chimiques. Cela se traduit, de façon pratique, par une loi conforme à la relation d'Arrhenius, liant la vitesse d'évolution  $V$  d'une propriété quelconque à la température absolue  $T$  [29]:

$$\ln V = -\frac{A}{T} + B \quad \text{II.3}$$

Avec :

A, B : constantes caractéristiques du polymère.

La vitesse de dégradation est aussi donnée par une relation analogue à (II.3)

$$v = v_0 \exp\left(-\frac{E}{T}\right) \quad \text{II.4}$$

Avec :

E : Energie d'activation du phénomène (Kcal/mol) ;

R : Constante des gaz parfait ( $R=8.314 \text{ J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ) ;

$V_0$  : Constante ;

T : température absolue (K).

La dégradation est d'autant plus rapide que la température est élevée.

Nous avons vu dans ce chapitre que le vieillissement thermique des isolants solides fait intervenir un vieillissement physique et un vieillissement chimique. Le vieillissement physique est caractérisé par une modification de la morphologie liée à la mobilité moléculaire, par des fissurations sous contrainte en milieu tensioactif, par les chocs thermiques et par les phénomènes de transfert de masse incluant la pénétration des solvants et la perte d'adjuvants.

Quant au vieillissement chimique, il fait intervenir les phénomènes d'oxydation, de réticulation, de dépolymérisation et de coupure de chaînes statistiques. Dans la pratique, les deux formes de vieillissement physique et chimique se superposent.

Dans une partie, nous avons fait une étude bibliographique sur l'endurance thermique des polymères. Cette étude a été consacrée à la caractérisation du vieillissement thermique utilisant le graphique d'endurance thermique pour déterminer l'indice de température ainsi que l'énergie d'activation du phénomène pour une propriété donnée.

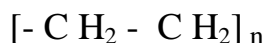
# **CHAPITRE III**

## **Techniques expérimentales**

Dans ce chapitre, nous présentons les différents dispositifs expérimentaux utilisés lors des essais réalisés concernant le vieillissement thermique du polyéthylène basse densité (PEBD). Des essais électriques et mécaniques sont réalisés au niveau du laboratoire de l'entreprise Electro-Industries d'AZAZGA (Tizi-Ouzou), afin de suivre l'évolution de la rigidité diélectrique  $E_d$ , la résistance à la traction  $R_T$  et l'allongement à la rupture  $A$  exprimé en pourcentage, en fonction du temps de vieillissement. Nous avons aussi fait des mesures électriques au niveau du laboratoire haute tension de l'Université UMMTO à l'aide du LCR mètre (la permittivité relative, facteur de pertes diélectriques), en fonction de la fréquence.

### III.1. Le Polyéthylène (PE)

Le polyéthylène est un matériau thermoplastique de la famille de polyoléfines contenant uniquement des carbones hybridés de types  $sp_3$  [40]. Sa molécule se présente sous forme de chaînes contenant 1000 à 2000 monomères. La formule chimique du polyéthylène est [41] :



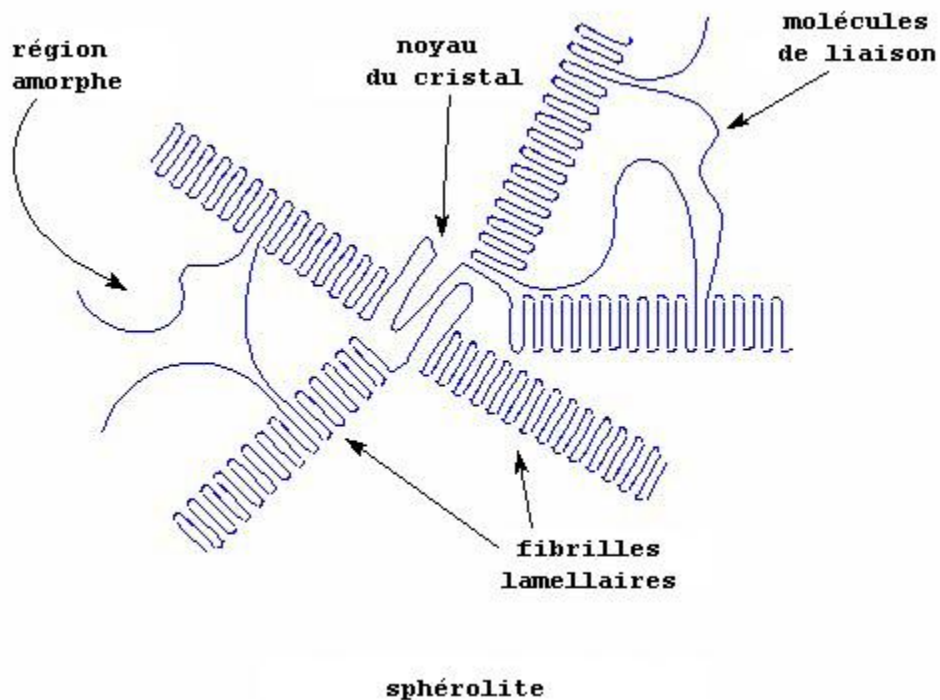
Partiellement cristallin, le polyéthylène contient deux phases [42, 43] :

- Une zone amorphe dans laquelle les chaînes sont disposées de manière désordonnée.
- Une zone cristalline dans laquelle les chaînes sont disposées de manière ordonnée formant ainsi des cristallites. Les chaînes dans les zones cristallines se regroupent sous forme de lamelles (fibrilles lamellaires) [44] de quelques centaines d'Angströms [43]. Ces lamelles sont typiquement arrangées comme des sphérolites (figure I.4) [42, 44].

Selon les conditions de polymérisation (pression, température, catalyseurs,...etc) on distingue deux grandes variétés de polyéthylène : le polyéthylène à basse densité (PEBD) et le polyéthylène à haute densité (PEHD). Ajouté à ces deux types, on peut obtenir par réticulation le polyéthylène réticulé chimiquement dit PRC.

#### III.1.1. Polyéthylène basse densité (PEBD)

Polyéthylène basse densité a été découvert en 1933 par Fawcett et Gibson [43]. Ce matériau est constitué de chaînes macromoléculaires comprenant des ramifications latérales de longueurs variables [46]. La présence de ces ramifications dans la chaîne du polyéthylène influe sur les propriétés physiques (densité, flexibilité, viscosité,...etc), et favorise l'initiation de l'oxydation [42]. La polymérisation du PEBD se fait à une pression comprise entre 1000 et 3000 atmosphères et à une température comprise entre 100°C et 300°C. Différents catalyseurs sont employés, dont le premier est l'oxygène. Sa concentration est très importante. En effet les rendements optimaux sont obtenus à environ 0.05% à 0.06%. Les autres catalyseurs sont les peroxydes organiques (tels que le peroxyde de benzoyle et le peroxyde bi tertiaire de butyle), les alkyles métalliques et les composés azoïques. Par la suite [47], le PEBD est extrudé avec incorporation éventuelle de quelques additifs du type antioxydant et mis sous forme de granulés utilisables directement dans l'industrie [48]. Grâce à sa structure non polaire, le PEBD possède de bonnes propriétés diélectriques. Pour cela il est utilisé comme un isolant dans la fabrication des câbles. La première tentative de son utilisation remonte à 1940 [49].



**Figure.III.1** Présentation d'un sphérolite de polyéthylène.

### III.1.2. Propriétés du PEBD

#### a. Propriétés physico-chimiques

Le PEBD est un polymère semi-cristallin, de densité située entre 0.91 et 0.92. Son taux de cristallinité est d'environ 43% à 50% et sa température de fusion cristalline est située entre 116°C et 140°C [46].

En général, le PEBD présente une bonne résistance chimique, il est [50] :

- Très résistant aux acides faibles ;
- Résistant aux acides forts non oxydants ;
- Très résistant aux bases faibles et fortes.

#### b. Propriétés mécaniques

Les propriétés mécaniques du PEBD dépendent essentiellement de sa masse molaire et de sa cristallinité. Nous pouvons citer entre autres [50] :

- La résistance à la traction variant de 9 à 23 [N/mm<sup>2</sup>].
- L'allongement à la rupture variant de 150% à 1000%.

### c. Propriétés électriques

Le PEBD est une substance non polaire, caractérisée par : une permittivité relative faible (entre 2 et 3) limitant ainsi le courant de déplacement, un facteur de pertes diélectriques relativement faible, et une rigidité diélectrique élevée [50].

## III.2. Préparation des Echantillons

### III.2.1. Découpage des éprouvettes

Pour nos essais, nous avons utilisé le polyéthylène basse densité sous forme de plaques de 2 mm d'épaisseur. Ces plaques ont été découpées en :

- Eprouvettes de forme carrée de 6\*6 cm pour les essais de rupture diélectrique ;
- Eprouvettes en forme d'haltère de longueur 5cm pour les mesures de l'allongement à la rupture et de la résistance à la traction.



**Figure III.1 :** Eprouvette sous forme carrée pour les essais de claquage.



**Figure III.2 :** Eprouvette sous forme d'haltère pou les essais de traction.

### III.3. Dispositifs expérimentaux

#### III.3.1. Vieillessement thermique

Le vieillissement thermique des échantillons se fait dans une étuve thermo-ventilée à une température constante, nous avons réglé cette étuve à 90°C, pour une période 2500 heures. Toutes les 500 heures on retire les échantillons pour faire des essais électriques et des essais mécaniques.



**Figure III.3 :** Etuve thermo ventilée.

#### III.3.2. Conditionnement des éprouvettes

Avant les tests de mesure, les éprouvettes ont été conditionnées dans un dessiccateur pendant au moins 24 h afin d'éliminer toute présence d'humidité. La figure IV.5 montre des échantillons en cours de conditionnement.



**Figure III.4 :** Dessiccateur.

### III.3.3. Dispositifs utilisés pour les essais électriques

#### a. Le LCR mètre

Le LCR mètre nous permet d'effectuer des mesures directes de la résistance, de la capacité, de l'inductance ainsi que du facteur de perte diélectriques. Les deux bornes du LCR sont branchées aux deux électrodes, l'échantillon est inséré entre ces dernières. Le facteur de pertes diélectriques sera obtenu en faisant une lecture directe sur le LCR mètre, tandis que la permittivité sera calculée en utilisant la valeur de la capacité obtenue sur même appareil (figure III.5.).



**Figure III.5 :** LCR mètre.

#### b. Le Spintermètre

L'échantillon est placé entre deux électrodes planes fixées dans une cellule en verre remplie d'huile isolante. Cette huile permet d'éviter les court-circuits. Après plusieurs claquages, l'huile a été remplacée. L'essai consiste à soumettre l'échantillon considéré à une rampe de tension de vitesse 2 kV/s jusqu'au claquage. Après rupture, l'épaisseur de l'éprouvette a été mesurée au point de perforation. La tension a été délivrée par un générateur de haute tension présenté à la figure III.6. Les expériences ont été effectuées à la température ambiante.



**Figure III.6 :** Spintermètre.

### III.3.4. Dispositif pour les essais mécaniques

L'appareil utilisé pour les essais mécaniques est une machine de traction. Elle est conçue pour étendre une éprouvette de dimensions normalisées à une vitesse constante de 50 mm/min et appropriée d'application de la charge et pour mesurer la force de rupture par traction ainsi que l'allongement à la rupture. L'appareil comprend un dynamomètre muni de mâchoires exerçant un effort de traction croissant. L'une des mâchoires est fixe, l'autre se déplace à une vitesse constante (figure III.7).



**Figure III.7 :** Machine de la traction.

### III.4. Mesure de l'épaisseur des éprouvettes

Les épaisseurs des éprouvettes sont mesurées à l'aide de différents appareils de mesures : micromètre et palmer (figure III.8.). Trois mesures d'épaisseurs sont prises pour chaque éprouvette afin de calculer la moyenne.



Figure III.8 : micromètre et palmer.

### III.5. Mesure des propriétés de polyéthylène basse densité

#### III.5.1. Mesure des propriétés électriques

##### III.5.1.1. Mesure de la permittivité relative $\epsilon_r$ , facteur de pertes diélectrique $\tan \delta$ et l'indice des pertes diélectriques

A l'aide de LCR mètre, nous avons mesuré capacité de l'éprouvette, ensuite nous avons déterminé la permittivité relative l'aide de la relation suivante.

$$\epsilon_r = \frac{C.e}{\epsilon_0.s}$$

III.1

C : La capacité. (F) ;

e : Epaisseur de l'isolant en [mm] ;

s : surface de l'électrode en [mm<sup>2</sup>] ;

Le facteur des pertes diélectrique sera obtenu par une lecture directe sur LCR mètre ;

La capacité elle aussi obtenu par une lecture directe sur le LCR mètre.

**III.5.1.2. Indice des pertes diélectriques**

Nous avons déterminé l'indice des pertes diélectrique à l'aide de la relation suivante :

$$\varepsilon'' = \varepsilon' \cdot \operatorname{tg} \delta \quad \text{III.2}$$

Avec :

$\varepsilon'$  : Permittivité relative ;

$\operatorname{tg} \delta$  : Facteur de pertes diélectrique.

**III.5.1.3. Mesure de la rigidité diélectrique**

Après avoir introduit l'éprouvette dans la cellule de mesure de spintermètre, on applique une tension croissante jusqu'au claquage. Le rapport de la tension de claquage sur l'épaisseur de l'éprouvette au point de perforation représente la rigidité diélectrique de l'isolant.

La rigidité diélectrique est donnée par la relation suivante :

$$E_d = \frac{U_d}{e} \quad \text{III.3}$$

Avec :

$U_d$ : Tension de claquage en [kV].

$e$  : Épaisseur de l'éprouvette au point de claquage en [mm].

**III.6. Essais mécaniques**

Avant l'essai, nous avons mesuré la section droite de l'éprouvette. Ensuite nous avons tracé deux repères distants de 10 mm sur la partie étroite de l'éprouvette. En effet, c'est sur cette partie que se produit la rupture.

L'essai consiste à soumettre l'éprouvette à la traction à une vitesse constante jusqu'à sa rupture. On mesure simultanément l'allongement à la rupture et la résistance à la traction sur une même éprouvette.

**III.6.1. Mesure de la résistance à la traction**

La résistance à la traction est le rapport de la charge à la rupture par la section droite de l'éprouvette.

$$R_T = \frac{F}{S} \quad \text{III.4}$$

Avec :

$R_T$  : résistance a la traction en [N/mm<sup>2</sup>] ;

F : force de traction en [N] ;

S : section droite de l'éprouvette en [mm<sup>2</sup>].

### III.6.2. Mesure de l'allongement à la rupture

$$A(\%) = \frac{(L-L_0)}{L_0} \times 100 \quad \text{III.5}$$

Avec :

L<sub>0</sub> : Longueur mesurée entre les deux repères avant la rupture de l'éprouvette (L<sub>0</sub>=10mm) ;

L : longueur mesurée entre les deux repères après la rupture de l'éprouvette.

Dans ce chapitre nous avons décrit les échantillons utilisés, les dispositifs expérimentaux ainsi que les méthodes de mesure des propriétés de polyéthylène basse densité (PEBD) : propriétés électriques (permittivité relative, facteur de pertes diélectriques, la capacité et rigidité diélectrique), propriétés mécaniques (résistance à la traction et l'allongement à la rupture).

# **CHAPITRE IV**

Résultats et discussion

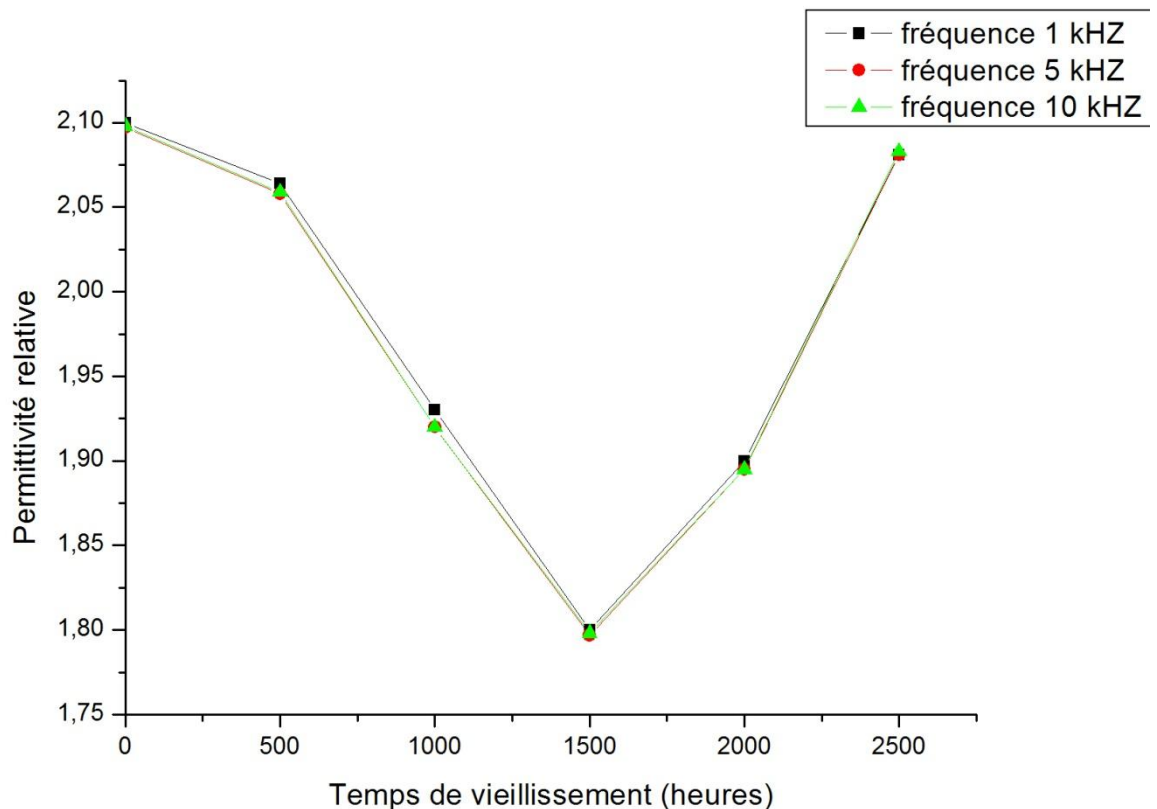
Dans ce chapitre, nous présentons les résultats expérimentaux obtenus lors des essais de vieillissement thermique sur le polyéthylène basse densité (PEBD). Ces résultats portent sur l'évolution des propriétés diélectriques du PEBD (permittivité relative, facteur de pertes diélectriques) en fonction du temps de vieillissement et de la fréquence, et sur les propriétés mécaniques (résistance à la traction, allongement à la rupture) et la rigidité diélectrique.

#### IV.1. Influence du vieillissement thermique sur les propriétés diélectriques

##### IV.1.1. Permittivité relative

##### IV.1.1.1. Variation de la permittivité relative en fonction du temps du vieillissement

La variation de la permittivité en fonction du temps de vieillissement pour une température de vieillissement (90 °C) pour différentes fréquences (1 kHz, 5 kHz, 10 kHz) est illustrée sur la figure IV.1.1.1.



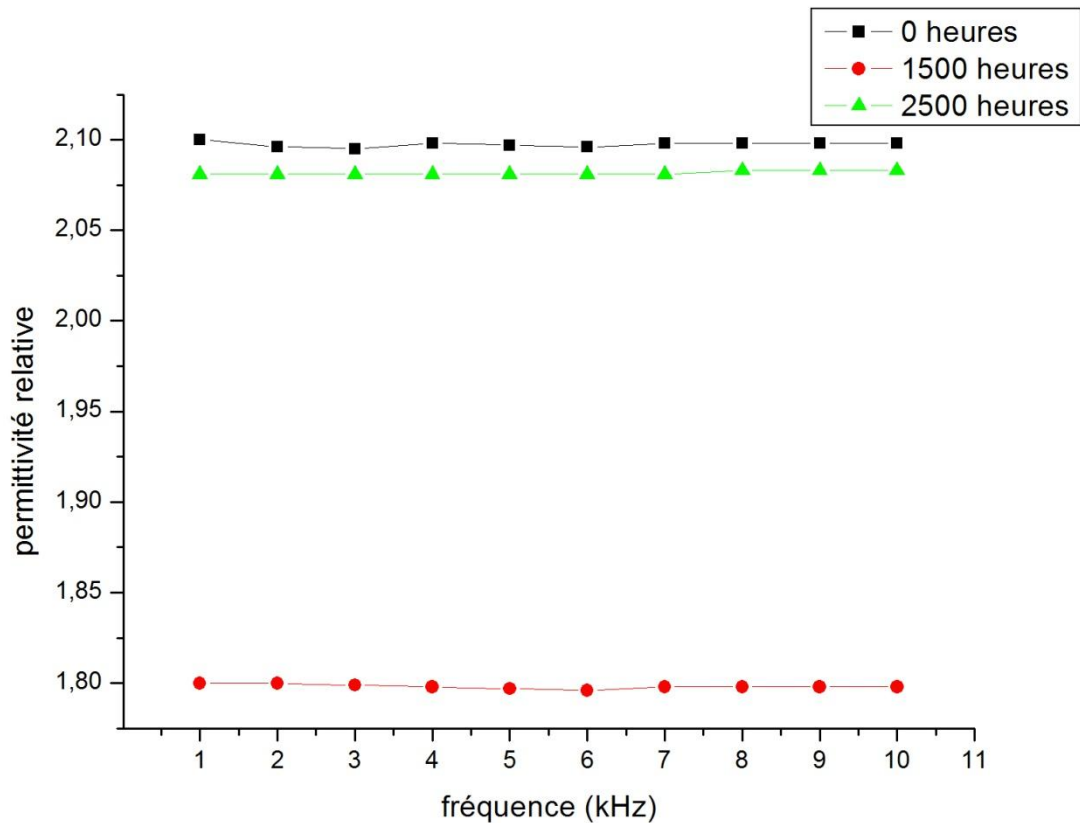
**Figure IV.1.1.1 :** variation de la Permittivité relative en fonction du temps de vieillissement.

Dans cette figure, nous remarquons que toutes les courbes ont la même forme. Elles présentent l'évolution de la permittivité relative en fonction du temps de vieillissement. Durant la période allant jusqu'à 1500 h, la permittivité diminue de 2,1 jusqu'à 1,8, la permittivité augmente jusqu'à 2,08 pour un temps de 2500h. La diminution de  $\epsilon_r$  au début du vieillissement peut être expliquée par le réarrangement de la structure moléculaire et le phénomène de réticulation.

### IV.1.1.2. Variation de permittivité relative en fonction de la fréquence

La variation de la permittivité relative en fonction de fréquence pour différents temps de vieillissement (0 heures, 1500 heures, 2500 heures), est illustrée sur la figure IV.1.1.2.

Nous remarquons que la permittivité relative reste constante en fonction de la fréquence. Ce résultat est attribué à l'absence de la polarisation.



**Figure IV.1.1.2.** : Variation de la permittivité relative en fonction de la fréquence.

## IV.1.2. Facteur de pertes diélectriques

### IV.1.2.1 Facteur de pertes diélectrique en fonction du temps de vieillissement

La variation du facteur de pertes diélectriques en fonction de temps du vieillissement à des fréquences différentes (1 kHz, 5 kHz, 10 kHz), est illustrée sur la figure IV.1.2.1.

Dans ces figures nous remarquons que le facteur de pertes diélectriques présente des allures décroissantes pour les basses fréquences avant et après vieillissement, puis il devient monotone et stable pour les hautes fréquences, avec parfois des pics de relaxation (augmentation et diminution, qui sont dus aux mouvements (rotation, translation et vibration) des segments plus ou moins longs de chaînes principales ou latérales la diminution de  $\text{tg}\delta$  au début du vieillissement nous pouvons l'attribuer à l'amélioration de la qualité de l'isolant indiquant une chute de la mobilité moléculaire [51, 25].

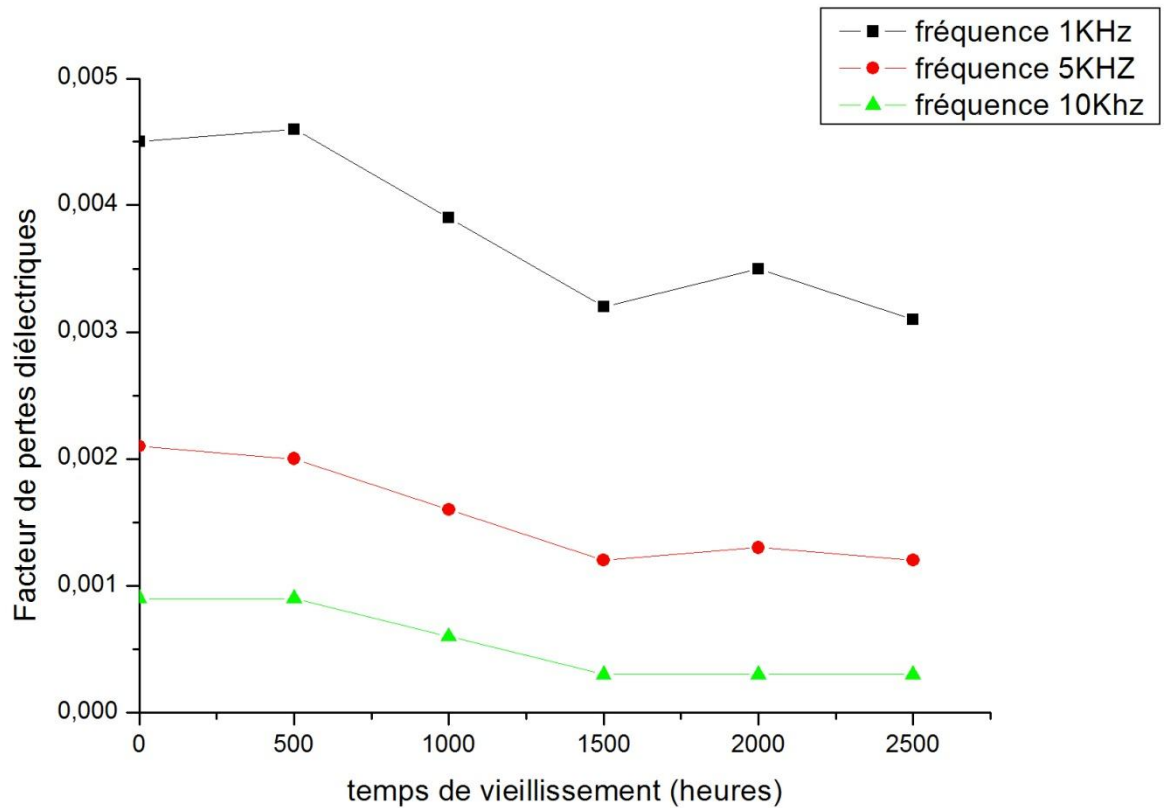


Figure IV.1.2.1. : Variation de facteur de pertes en fonction des temps de vieillissement.

#### IV.1.2.2 Facteur de pertes diélectrique en fonction de la fréquence

La figure (IV.1.2.2) représente la variation du facteur de pertes diélectrique en fonction de la fréquence et la durée d'application de la contrainte.

Nous constatons que le facteur de pertes diélectrique diminue avec l'augmentation de la fréquence et la durée d'application de la contrainte. Le facteur de pertes diélectriques décrit l'équilibre entre les comportements visqueux et élastique dans un polymère et son évolution pendant le vieillissement montre alors la recombinaison des chaînes comprenant la réticulation[52].

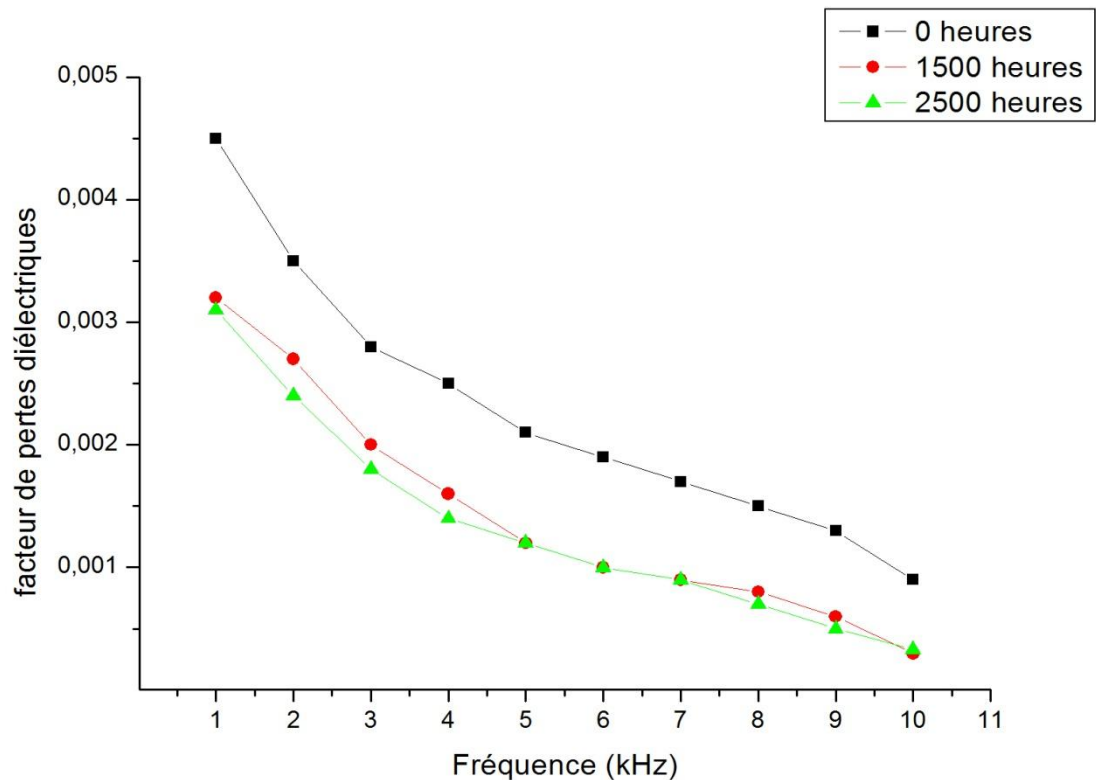


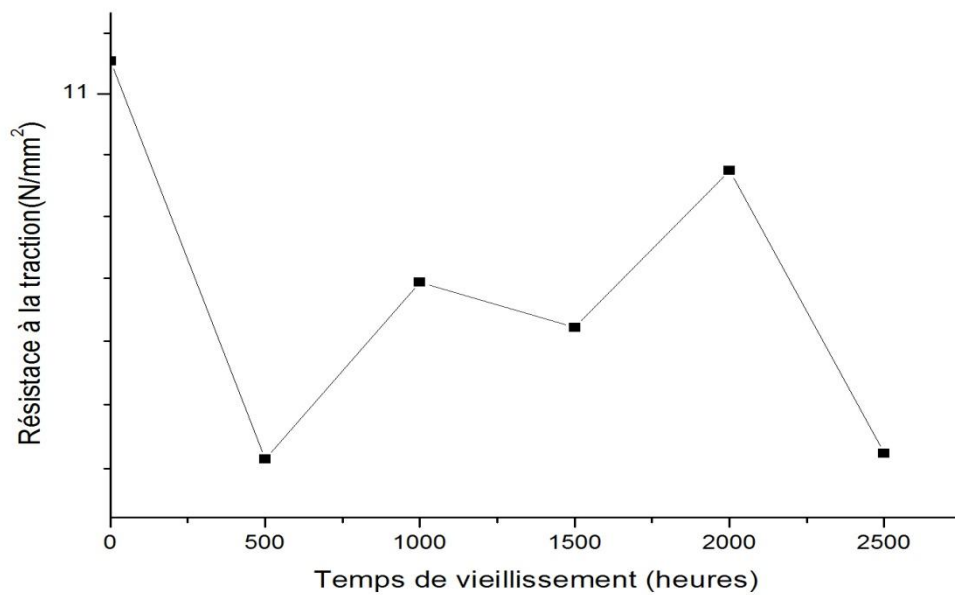
Figure IV.1.2.2 : Variation de facteur de pertes diélectriques en fonction de la fréquence.

## IV.2. Influence du vieillissement thermique sur les propriétés mécaniques

### IV.2.1. La résistance à la traction

Pour étudier le comportement mécanique du polyéthylène basse densité subis à un vieillissement thermique, on prend des éprouvettes sous forme d'haltère, pour mesurer les propriétés mécaniques du PEBD à savoir la résistance à la traction et l'allongement à la rupture.

La figure IV.2.1 montre l'évolution de la résistance à la traction en fonction du temps de vieillissement. Pendant les premières 500 h de vieillissement, la résistance à la traction diminue rapidement de  $11,06 \text{ N/mm}^2$  à  $10,35 \text{ N/mm}^2$ . Ensuite, elle augmente jusqu'à  $10,66 \text{ N/mm}^2$  puis diminue de nouveau à  $10,58 \text{ N/mm}^2$  correspondant à 1500 h. Au-delà de ce temps, la résistance à la traction augmente à  $10,86 \text{ N/mm}^2$  après un vieillissement de 2000 h. Puis elle diminue jusqu'à  $10,36 \text{ N/mm}^2$  pour les 2500 h. Pour la diminution s'explique par la coupure de chaîne et l'augmentation s'explique par une réticulation. La valeur de l'allongement à la rupture pour 2500h est inférieure à celle de 0 h, donc le PEBD subit des coupures de chaînes.

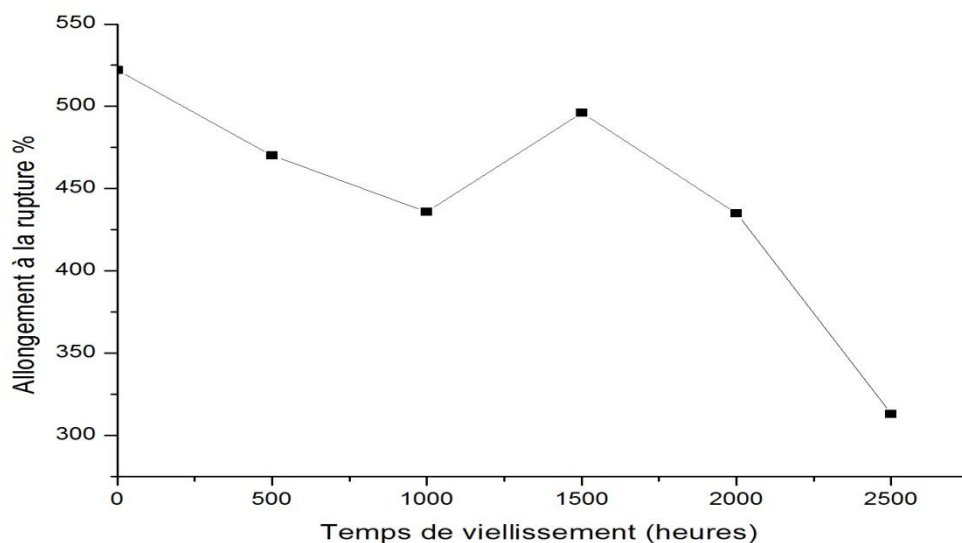


**Figure IV.2.1 :** variation de la résistance à la traction en fonction du temps de vieillissement.

#### IV.2.2. Allongement à la rupture

La variation de l'allongement à la rupture en fonction de temps de vieillissement, est illustrée sur la figure IV.2.2.

La courbe montre clairement une diminution de cette caractéristique, d'une valeur de 522 % au début de vieillissement à une valeur de 313 % a la fin de vieillissement. La diminution de l'allongement à la rupture est du probablement à une rupture de chaînes carbonée du matériau [53] et à une perte plastifiant [25].

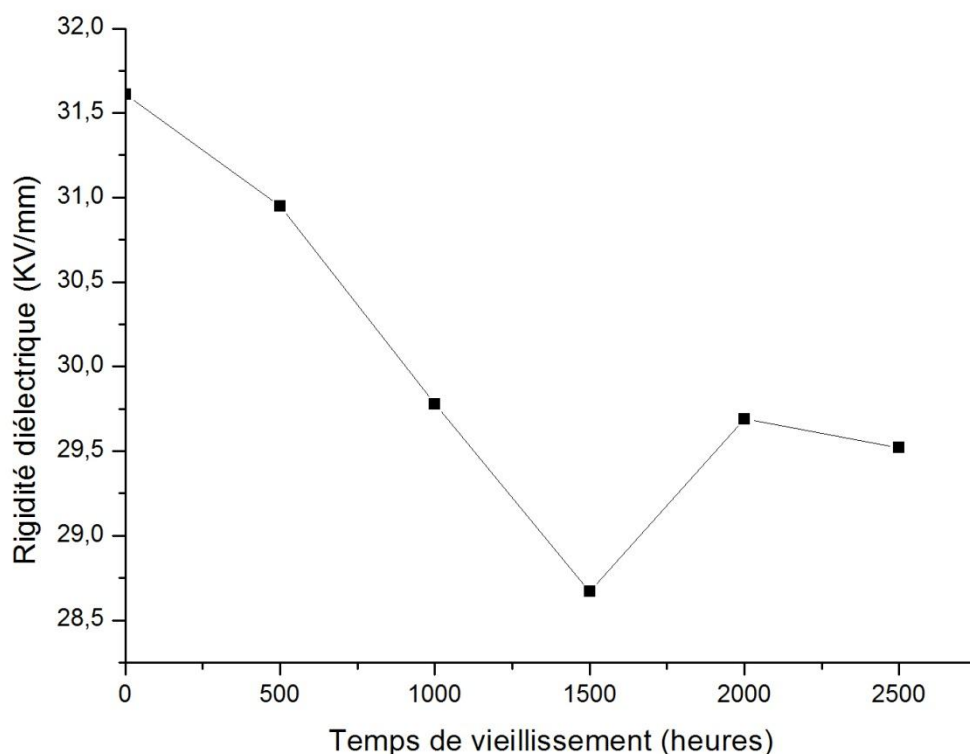


**Figure IV.2.2:** Variation de l'allongement à la rupture en fonction du temps de vieillissement.

### IV.3. Influence du vieillissement thermique sur les propriétés électriques

#### IV.3.1. Rigidité diélectrique

La figure IV.3.1 représente la variation de la rigidité diélectrique en fonction du temps du vieillissement. Au début du vieillissement, la rigidité diélectrique diminue de 31.61 KV/mm et atteint un minimum de 28.67 KV/mm après 1500 h puis augmente jusqu'à 29.69 KV/mm à 2000 h. Au-delà de ce temps, la rigidité diélectrique décroît de nouveau à 29.52 KV/mm correspondant à un temps de vieillissement de 2500 h. Il ya apparition d'un pic à 1500h qui est dû à la non homogénéité des éprouvettes. L'augmentation de la rigidité diélectrique serait due probablement à un effet de réticulation, donc à une diminution de la mobilité des porteurs de charges. Quant à la diminution de la rigidité diélectrique, elle peut être due à une rupture de chaînes de macromolécules, donc à une facilité de déplacement des porteurs de charges.



**Figure IV.3.1 :** Variation de la rigidité diélectrique en fonction du temps de vieillissement.

Dans ce chapitre nous nous sommes intéressés à l'étude de l'évolution des propriétés diélectriques (permittivité relative, facteur de pertes diélectrique) en fonction du temps de vieillissement et en fonction de fréquence, des propriétés mécaniques (résistance à la traction et l'allongement à la rupture), de propriété électrique (la rigidité diélectrique), en fonction du temps de vieillissement.

Les résultats obtenus montrent que le vieillissement thermique influe sur les propriétés diélectriques et mécaniques et électriques du polyéthylène basses densité. Nous avons obtenu une variation des caractéristiques électrique, la permittivité diminue en fonction du temps de vieillissement et constante en fonction de la fréquence, le facteur de pertes diélectrique diminue en fonction du temps de vieillissement et en fonction de fréquence. La rigidité diélectrique diminue en fonction de temps de vieillissement, l'étude de comportement mécanique (résistance

à la traction et l'allongement à la rupture) du PEBD montre une diminution ceci est probablement liée au phénomène d'oxydation qui s'accompagne de coupures de chaînes.



# **Conclusion générale**

Dans le premier chapitre, nous avons donné quelques rappels sur les isolants et les diélectriques, ensuite nous avons donné des généralités sur les polymères à savoir leurs définitions, leurs classifications et leurs propriétés.

Le deuxième chapitre a pour objectif la description des effets du vieillissement thermique sur les polymères.

La présentation des techniques expérimentales a fait l'objet du troisième chapitre. Nous avons d'abord présenté le matériau étudié. Ensuite, nous avons détaillé le protocole de vieillissement. Enfin, nous avons évoqué les différentes techniques expérimentales utilisées pour les caractérisations diélectriques, mécaniques et électriques.

La variation des caractéristiques diélectriques du PEBD (la permittivité, facteur des pertes) diminue en fonction du temps de vieillissement, la permittivité relative monotone et stable en fonction de la fréquence

L'étude du comportement mécanique nous montre que la résistance à la traction et l'allongement à la rupture du PEBD a des variations, vu qu'on a constaté une diminution et une augmentation au cours de vieillissement et cela est dû aux coupures des chaînes et à la réticulation.

Les caractéristiques électriques (rigidité diélectrique) diminuent en fonction du temps de vieillissement, avec apparition de quelques pics, leur apparition serait due aux changements structurels induits par le vieillissement.



# Références bibliographiques

- [1] M.M. Ueki, J.H. Vilckas, L.G. Albiero, M.Zanin, « DC Electrical Conductivity of Recycled PP and PS From Post Consumer packaging », 7 th Int. Conf. on Properties and Appl. Of Dielectric Materials, June 1-5, 2003, pp 771-713.
- [2] M.A. Sussi, G.R. Govinda Raju « Electrical conduction current in polytetrafluoroethylene », Elect. Insul. And Dielectric Phenomena, 1990, Conf. on 28-31 Oct. 1990, pp 196-2001.
- [3] M. MOUDOUD « Etude de la conduction électrique dans les polymères isolants », Thèse de doctorat, UMMTO, 2010.
- [4] F. LOUNIS et S.RABEHI, « Etude des propriétés de l'EPDM (Ethyène Propylène Diène Monomère) sous la contrainte thermique » Mémoire de fin d'étude de master Professionnel, 2014.
- [5] Serge Etienne et Laurent Davide. « Introduction a la physique des polymères », Edition Dunod ; 2002
- [6] Y. Agouar, A. Hideur, K. mokri « Contribution à la caractérisation des polymères soumis à des décharges couronnes », mémoire d'ingénieur en électrotechnique, UMMTO 2013.
- [7] P. Blackmore and D. Birtwhistle « surface discharges on polymer insulator shed surfaces ». IEEE transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, 4, april 1997
- [8] M.Fontanille, Y.Gnanou et J.Lehn; « Chimie et Physico-chimie des Polymères » ; DUNOD ; Belgique ; 1<sup>re</sup> édition; 2005.
- [9] P. Notngher, A. Toureille, J. Santana , et al. Study of space charge accumulation in polyolefins submitted to ac stress. IEEE Trans. Dielec. Elec. Insul., 8, pp 972-984, 2001.
- [10] J.Dorlot, J. Massounave et al, "des matériaux", edition de l'école polytechnique des Matériaux, Juillet, 1995.
- [11] M. Pays, « Câbles de transport d'énergie – Technologies. Caractéristiques », Techniques de l'ingénieur, rubrique Réseaux Electriques Mixtes - Ingénierie des Réseaux, D 4520, décembre 1994.
- [12] A-F. Gourgues-Lorenzon et J-M Haudin. Matériaux pour l'ingénieur ; 2006.
- [13] Jean-Paul Bilon, Jean-Marie Dorlet « des matériaux », 3<sup>ème</sup> édition. Ecole polytechnique de Montréal, 2000. Sciences Exacte, Département de chimie, 2009.
- [14] M. Carrega et Coll, « Matériaux industriels » Dunod, Paris, 2000.
- [15] Matériaux pour l'ingénieur. A-F. Groupes-Lorenzo et J-M. Haudin. 2006.
- [16] « L'indispensable en polymères ». Cycle universitaire scientifique. Geneviève M.L.

- Dumas et Roger I. Ben-Aim ; 2008.
- [17] Hermann Etiteurs, « Physique des polymères », I. Structure, Fabrication, Emploi Patrick Combette, Isabelle Ernoult ; 2005.
- [18] C.E.I 540, «Méthodes d'essais pour les enveloppes isolantes et les gaines des câbles électriques rigides et souples (Mélanges élastomères et thermoplastiques) », Edition 1983.
- [19] Y. Mecheri, «Influence du vieillissement thermique continu sur les propriétés diélectriques et mécaniques du PRC utilisé dans l'isolation des câbles moyenne tension», Thèse de magister, ENP, Octobre 1998.
- [20] J. Verdu «vieillissement des plastiques», AFNOR Technique, Edition Eyroles, Paris 1984.
- [21] J.P. Trotignon, «Précis de matières plastiques. Structures, propriétés, mis en œuvre et normalisation», Edition Nathan, Paris, 1982.
- [22] B. Fallou, C Stevens, A.G. Day, «Méthodes complémentaires aux essais d'endurance thermique des matériaux isolants» CIGRE, Group 15-05, Septembre 1982.
- [23] J. Verdu, «Vieillissement physique», Techniques de l'Ingénieur, publication A3150, 1980.
- [24] J. Verdu, « Effet du vieillissement sur les propriétés mécaniques », EDP Sciences, Echanges physique- Industrie, N°. 5, pp. 19-23, 2000.
- [25] Dj. BOUGUEDAD, « Influence du vieillissement thermique sur les propriétés de EPDM », thèse de Doctorat, UMMTO, 2010.
- [26] J. Verdu «Comportement a long terme» Technique de l'ingénieur, publication A3150, 1976.
- [27] J. Verdu, «Vieillissement chimique», Techniques de l'Ingénieur, publication A3150, 1980.
- [28] S. Pelissou, H.St Ong, M.R Wertheimer, «Temperature dependence of electrical strength of polyethylene», IEEE, Conference on the Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, (CEIDP), pp. 546-551, 1986.
- [29] C. Menguy, « Mesure des caractéristiques des matériaux isolants solides », Techniques de l'ingénieur, D 2310, D2II, 1997.
- [30] B. Fallo, « Caractéristiques des isolants solides. Méthodes de mesures. Valeurs et signification », Techniques de l'ingénieur, D 214 et D 215, D2I, 1970.
- [31] B. Fallou, « Comportements spécifiques des matériaux isolants solides soumis à diverses contraintes (chaleur, champ électrique, radiations). Résumé des connaissances actuelles et normalisation », RGE N° 10, pp. 756- 767, Octobre 1985.

- [32] E. Moriame, « L'endurance thermique des isolants et systèmes d'isolation. Incidence dans la construction des matériels. Indice de température. Contrôle du vieillissement thermique de différents matériaux isolants », RGE N° 7/8, pp. 445-451, Juillet/Août 1974.
- [33] P. Belloc, B. Fallou, « Etude du vieillissement thermique des matériaux utilisés dans la construction des câbles électriques », RGE, N°. 1, pp. 243-246, Janvier 1970.
- [34] CEI 216-1, « Méthodes générales pour la détermination des propriétés d'endurance thermique, des indices de températures et des profils d'endurance thermique ». 1974.
- [35] Z. Szczepanski « Uktady izolacyjne urzadzen elektroenergetyczne » praca zbiorowa W.W.T, Varsovie 1978.
- [36] G. Stevens, B. Fallou, A. Day, « Méthodes complémentaires aux essais d'endurance thermique des matériaux isolants », CIGRE rapport N°3 groupe 15, 1982.
- [37] L. Deschamps, C. Caillot, M. Paris, J. perret « l'utilisation des matériaux synthétiques pour l'isolation des câbles HT et THT », RGE N°5, pp. 343-359 1982.
- [38] E. L. Brancato, « Insulation aging, historical and critical review », IEEE Transations on Electrical Insulation, VOL.EI-13, pp. 308-317, 1978.
- [39] J. Carlier, « L'endurance thermique des isolants et systèmes d'isolation, incidence dans la construction des matériels, classification thermique des systèmes d'isolation des machines électriques de grande puissance » RGE N°7/8, pp. 467-469, 1974.
- [40] K. B. Nicole, A.H. Marc, « Post-polymerization functionalization of polyolefins », Chemical Society Reviews, Vol. 34, pp. 267-275, 2005.
- [41] A. Vonhippel, « Les diélectriques et leur application », traduit par M.Sausade, Edition Dunod, Paris, 1961.
- [42] A. Barlow, « The chemistry of polyethylene insulation », IEEE, Electrical Insulation Magazine, Vol. 7, N° 1, pp. 8-19, 1991.
- [43] L. Boudou, J. Guastavino, « Influence of temperature on low-density polyethylene films through conduction measurement », Journal of Physics D: Applied Physics, Vol. 35, pp. 1555-1561, 2002.
- [44] U.H. Nilsson, R.C. Dammert, A. Campus, A. Sneck, H. J. Jansson, « Morphology of polyethylene for power cable insulation: effects of antioxidant and crosslinking », IEEE, International Conference on Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics, pp. 365-367, Vasteras Sweden, 1998.
- [45] A.Smedberg, B. Gustafsson, T. Hjertberg, « What is Crosslinked Polyethylene », IEEE, International Conference on Solid Dielectrics, Vol.1, pp. 415-418, Toulouse

France, July 5-9 2004.

- [46] R.Fournie, « Les isolants en électrotechnique. Essais, mécanismes de dégradation, applications industrielles », Edition Eyroles, Paris, 1990.
- [47] D.C. Miles, « Technologie des polymères », Edition Dunod, Paris, 1968.
- [48] N. Demay, J.C. Bobo, « Câbles haute tension à isolation polyéthylène ou polyéthylène réticulé chimiquement », R.G.E., Tome 85, N°9, pp. 731-736, Septembre 1976.
- [49] E. Peschke, R. Von-Olshaussen, «Cable Systems for high and Extra-high Voltage», Erlangen and Munich, GmbH, Publicis MCD Verlag, 1999.
- [50] S. Fusesserry, « Polyéthylènes basse densité », Techniques de l'Ingénieur, Publication A 3310, 1996.
- [51] L. BOUKEZZI, « Influence du vieillissement thermique sur les propriétés du PRC utilisé dans l'isolation des câbles de HT », Thèse de Magister, ENP, juin 2007.
- [52] M. Belhiteche El Hadi. « Etude de la dégradation d'un solide isolant soumis aux décharges électriques de surface », Mémoire de magister;UMMTO 2012.
- [53] M. Nedjar, “Influence du vieillissement thermique sur les propriétés du PVC utilisé dans l'isolation des câbles de haute tension”, Thèse de Magister, Université de Tizi-Ouzou, 1991.

## **Résumé**

Grâce à ses excellentes propriétés, le Polyéthylène basse densité (PEBD) est largement utilisé dans l'isolation de câbles moyenne tension (MT) et haute tension (HT). Cependant, sous conditions de service, l'isolation en PEBD peut subir des dégradations cruciales lorsqu'elle est exposée aux différentes contraintes. L'objectif de cette thèse est l'étude des effets des vieillissements thermique sur les caractéristiques du PEBD. En effet, une caractérisation électrique a été effectuée et concerne le suivi de l'évolution du facteur de pertes diélectriques, de la constante diélectrique, la rigidité diélectrique.

Les propriétés mécaniques (allongement à la rupture, résistance à la traction) ont été mesurées. Les résultats expérimentaux ont montré que les différentes contraintes affectent, à des degrés différents, les propriétés du PEBD.

## **Mots-clés**

Polyéthylène basse densité (PEBD), Isolation, Vieillissement, Propriétés électriques, Propriétés mécaniques.