#### REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE UNIVERSITE MOULOUD MAMMERI DE TIZI-OUZOU



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

#### Mémoire de MAGISTER

en Electrotechnique

**Option : Machines Electriques** 

Présenté par :

#### M. BELHITECHE El Hadi

Ingénieur d'Etat en Electrotechnique

#### Thème

# Etude de la dégradation d'un solide isolant soumis aux décharges électriques de surface

Soutenue publiquement le 28/06/2012	devant le jury composé de :	
M. HADDAD Salah	Professeur à l'UMMTO	Président
M. HANDALA Mohand Amokrane	Maître de Conférences à l'UMMTO	Rapporteur
M. LAMROUS Omar	Professeur à l'UMMTO	Examinateur
M. MOUDOUD Mustapha	Maître de Conférences à l'UMMTO	Examinateur
M. BOUGUEDAD Djaffar	Maître de Conférences à l'UMMTO	Examinateur

#### Remerciements

Ce travail a été effectué au laboratoire Haute Tension sous la direction de Monsieur M. A. HANDALA, Maître de Conférences à l'université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou.

Mes remerciements s'adressent en premier lieu à Monsieur M. A. HANDALA, pour la confiance qu'il m'a accordée en acceptant de m'encadrer. Sa grande qualité scientifique et son entière disponibilité ont fortement contribué à l'accomplissement de ce travail. Jamais à court d'idées, il m'a transmis son expérience dans le domaine de la dégradation des polymères sous décharges et des techniques de caractérisations et prodigué ses conseils tant au niveau scientifique et technique que rédactionnel. Il a participé à ce que ce travail soit le début d'une carrière en recherche que j'espère longue. Je l'en remercie chaleureusement.

Je remercie très vivement Monsieur S. HADDAD, Professeur à l'université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou qui m'a fait l'honneur d'accepter de présider le jury chargé d'examiner ce travail. Je lui exprime ma profonde reconnaissance pour les moyens qu'il a mis à notre disposition à la PG et pour ses qualités humaines.

J'adresse mes vifs remerciements à Monsieur O. LAMROUS, Professeur à l'université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou qui à bien voulu me faire l'honneur de participer à ce jury d'examen, mais aussi pour ses encouragements et ses conseils précieux. Que ma profonde gratitude lui soit ici témoignée.

Je suis heureux de remercier Monsieur M. MOUDOUD, Maître de Conférences à l'université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou qui a aimablement accepté de juger ce travail. Je lui exprime toute ma gratitude pour m'avoir fait partager ses larges connaissances, pour sa rigueur scientifique et pour les discussions qu'on a eu, combien sont enrichissantes.

Je remercie très sincèrement Monsieur D. BOUGUEDAD, Maître de Conférences à l'université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou pour avoir accepté d'examiner mon travail.

Je remercie également Monsieur Y. MECHERI, Maître de Conférences à l'université des sciences et de la technologie Houari-Boumediene d'Alger pour ses encouragements, ses conseils et ses orientations. Malgré son activité intense, il s'est toujours montré disponible, à l'écoute et enthousiaste. Je tiens à lui exprimer ma plus grande reconnaissance. J'espère bénéficier de son savoir encore à l'avenir.

La partie expérimentale de ce travail n'aurait pas pu être réalisée sans les compétences techniques de nombreuses personnes ; Ainsi :

Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance envers Mademoiselle N. KIRECHE Maître assistante à l'université de Bouira pour son implication dans ce travail, et plus particulièrement, pour l'aide qu'elle m'a apportée à la réalisation de films de PMMA. Je la remercie également pour son soutien et ses conseils avisés qui m'ont permis de surmonter les moments difficiles.

Je voudrai particulièrement remercier Mademoiselle Z. TOUATI pour sa gentillesse, sa motivation et pour le temps qu'elle a consacré dans le traitement des spectres Infrarouge.

Je tiens également à remercier Monsieur S. AMIROUCHE pour les caractérisations par MEB. Sa disponibilité, son investissement et son enthousiasme pour la recherche m'ont beaucoup apporté.

Que Monsieur A. CHAOUCHI, Maitre de conférences à l'université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou, Responsable de laboratoire des Polymères et Céramiques où ont été effectuées les mesures de permittivités, trouve ici l'expression de ma sincère reconnaissance.

Merci à Monsieur D.BELKACEMI, Responsable de l'unité Transformateurs à l'ENEL pour les mesures de rayons de courbure des électrodes pointes.

J'associe à ces remerciements Mademoiselle F. ZEBOUDJ et Monsieur H.GOUDJIL, doctorants à l'université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou pour l'aide précieuse qui m'ont apporté pour la mesure de courant.

Un grand merci à tous ceux qui ont, de près ou de loin, contribué à l'aboutissement de ce travail.

Enfin, je tiens à remercier mes parents pour la confiance qu'ils m'ont accordée, pour m'avoir toujours aidé à la réalisation de mes projets et pour leur soutien sans faille.

### Sommaire

Introduction générale1
Chapitre I : Décharges électriques dans les gaz
I.1.Introduction
I.2.Électrons primaires
I.3. Ionisation, recombinaison et attachement électronique
I.4. Décharge de Townsend et critère d'auto-entretien de la décharge 4
I.5. Loi de Paschen
I.6. Les plasmas
I.7. Caractéristique courant-tension et régimes de décharge
I.8. La décharge couronne
I.8.1. Mécanisme de décharge couronne 8
I.8.2. Cas d'une pointe positive
I.8.3. Cas d'une pointe négative 10
I.9. Conclusion
Chapitre II : Décharges électriques de surface
II.1. Introduction
II.2.Décharges électriques de surface14
II.2.1. Décharges glissantes aux interfaces air/solide14
II.2.2. Caractérisation optique des décharges glissantes14
II.2.3. Les lois de Toepler
II.2.4. Paramètres influençant les décharges de surface19
II.2.4.1. Influence de la polarité de la tension sur la forme des décharges glissantes 19
II.2.4.2. Influence de la nature et de l'épaisseur du solide isolant sur la forme des décharges glissantes
II.2.4.3. Influence de la nature et de l'épaisseur du solide isolant sur la langueur finale des décharges glissantes
II.2.5. Dégradation de la surface du solide22
II.2.6. Similarité de la décharge glissante avec la décharge de foudre

II.3. Les décharges à barrière diélectrique	22
II.3.1. Décharges à barrière diélectrique volumique	23
II.3.1.1. La décharge à barrière diélectrique silencieuse	23
II.3.1.2. La décharge lumineuse homogène	23
II.3.2. Déchargés à barrière diélectrique surfacique	23
II.3.3. Influence de l'introduction d'une barrière diélectrique dans l'intervalle d'air	24
II.3.3.1. Influence de la position de la barrière	24
II.3.3.2. Influence de l'épaisseur de la barrière et de la permittivité	24
II.3.4. Applications des décharges à barrière diélectrique	24
II.3.4.1. Production d'Ozone	24
II.3.4.2. Traitement des gaz	25
II.3.4.3. Traitement de surfaces	25
II.3.4.4. Eclairage et écrans à plasma	25
II.4. Les décharges partielles	26
II. 5. Conclusion	26

#### Chapitre III : Caractéristiques du courant de décharges de surface

III.1. Introduction
III.2. Montage expérimentale
III.3. Essais préliminaires
III.4. Courant de décharge de surface
III.4.1. Introduction
III.4.2. Mesure de courant maximum de décharge
III.4.2.1. Forme des impulsions du courant de décharge
III.4.2.2. Le temps de montée et de décente d'une impulsion de courant de décharge 34
III.4.2.3. Influence de la tension appliquée sur courant maximum de décharge
III.4.2.4. Influence de l'épaisseur de l'isolant solide sur courant maximum de décharge39
III.4.2.5. Influence de l'épaisseur de la couche d'air sur courant maximum de décharge40
III.4.2.6. Influence de la position de l'interface sur courant maximum de décharge43

III.4.2.7. Influence de temps de vieillissement et l'état de surface du diélectrique sur courant maximum de décharge	le 45
III.4.3. Charge associée à la décharge électrique	46
III.4.3.1. Introduction	46
III.4.3.2. Evaluation de la charge associée à une impulsion maximum de courant	46
III.5. Conclusion	
Chapitre IV : Analyses physico-chimiques et interprétations	
IV.1. Introduction	
IV.2. Définition d'un polymère	49
IV.2.2 Polymérisation	50
IV.2.3. Les propriétés diélectriques des polymères	51
IV.2.3.1. Résistivité superficielle	51
IV.2.3.2. Rigidité électrique	51
IV.2.3.3. Permittivité et facteur de dissipation diélectrique	52
IV.2.4. Description du poly méthacrylate de méthyle (PMMA)	53
IV.2.5. Caractéristiques du PMMA	54
IV.3. Analyse par la spectroscopie d'impédance	55
IV.3.1. Influence de la fréquence sur la permittivité relative du PMMA	55
IV.3.2. Influence de la fréquence sur le facteur de dissipation	58
IV.4. Analyse microscopique	59
IV.4.1. Constitution d'un microscope électronique à balayage (MEB)	59
IV.4.2. Principe de fonctionnement du MEB	60
IV.4.3. Préparation des échantillons	62
IV.4.4. Résultats expérimentaux et discussion	62
IV.4.4.1. Topographie de la surface du solide isolant	63
IV.4.4.1.1. Système pointe-plan	63
IV.4.4.1.2. Système sphère-plan	66
IV.4.4.2. Influence du temps de vieillissement sur la longueur finale des décharge	es74
IV.4.4.3. Analyse par diffraction des rayons X	74
IV.5. Analyse par spectroscopie infrarouge	

IV.5.1. Introduction
IV.5.2. Préparation des films de PMMA77
IV.5.3. Technique expérimentale77
IV.5.4. Analyse du spectre infrarouge79
IV. 6. Conclusion
V. Modélisation des mécanismes de dégradation
V.1. Introduction
V.2. Modèle de mécanisme de formation des groupements OH
V.3. Processus de rupture diélectrique de l'isolation par décharges de surface
V.4. Dégradation du PMMA87
V.5. Conclusion
Conclusion générale et perspectives90
Publications et communications
Références bibliographiques92

Résumé......97

#### Introduction

Les structures isolantes mixtes gaz/solide sont présentes dans de nombreux appareillages à haute et moyenne tensions comme les transformateurs et condensateurs de puissance, les disjoncteurs et les câbles ainsi que dans les réseaux de transport et de distribution d'énergie électrique (isolateurs de support et de traversée). Elles sont aussi utilisées dans les systèmes de traitement de surface [1] et de dépollution [2]. Dans certains composants, comme les disjoncteurs isolés au gaz, par exemple, les isolants solides sont utilisés comme enveloppe de l'appareil et comme support (buse) pour les électrodes (contacts); le gaz est utilisé pour ses propriétés isolantes et pour le soufflage de l'arc. Dans le cas des transformateurs de puissance, en plus de l'isolation des bobinages et des traversées, les solides servent comme panneaux (rôle mécanique) et comme barrière isolante en particulier dans les transformateurs cuirassés.

Durant leur exploitation, les équipements électriques et donc les structures isolantes mixtes qui y sont intégrées, sont exposés à différents types de contraintes : mécanique, thermique, électrique, chimique et environnementales. Dans cette étude, nous nous intéressons plus particulièrement aux contraintes électriques. En présence d'un champ électrique, divers phénomènes peuvent prendre naissance dans le volume ou à la surface des matériaux constituants l'isolation mixte. En effet, au-dessus d'une certaine valeur dite de seuil du champ électrique, des décharges volumiques ou surfaciques peuvent prendre naissance et se développer jusqu'à la rupture diélectrique (en volume) ou au contournement de l'isolateur conduisant ainsi à la destruction de la structure isolante voire à la mise hors service du système.

Les travaux sur les décharges se propageant aux interfaces gaz/solide sont peu nombreux en comparaison avec ceux consacrés à l'étude des phénomènes de claquage dans les solides seuls ou les gaz seuls. La compréhension des mécanismes de dégradation de la surface d'un polymère est fondamentale pour la conception et le dimensionnement des appareillages.

Dans la présente étude, nos investigations visent à explorer la décharge électrique de surface et ses effets sur la dégradation du polymère, le poly méthacrylate de méthyle (PMMA).

Le présent mémoire comporte cinq chapitres. Dans le premier chapitre, nous décrivons d'abord les phénomènes de décharges dans les gaz, ensuite les principaux mécanismes de la décharge couronne.

Nous présenterons dans le deuxième chapitre, une brève revue bibliographique qui traite des décharges glissantes. Nous donnerons les différentes étapes qui ont marqué leur étude. Nous évoquerons aussi les décharges à barrière diélectrique et leurs domaines d'application.

L'analyse des résultats expérimentaux de mesure de courants de décharge enregistrés fera l'objet du troisième chapitre. L'influence de divers paramètres sur les courants associés aux décharges y est également traitée.

Au chapitre quatre, nous étudierons la dégradation du diélectrique sous l'action des décharges de surface. Nous analyserons les modifications des propriétés physico-chimiques de la surface du PMMA soumis aux décharges couronnes. Nous utiliserons pour cela des techniques d'observation et d'analyse physico-chimique ainsi que des mesures électriques.

Dans le dernier chapitre, nous présenterons le modèle de schéma cinétique de dégradation du PMMA. Nous terminerons notre travail par une conclusion générale et quelques perspectives.

## Chapitre I Décharges électriques dans les gaz

#### **I.1.Introduction**

Les phénomènes de décharge électrique, étudiés pourtant depuis prés de deux siècles [3], font toujours l'objet de recherche active auprès des scientifiques. On pourrait s'étonner de cet état de fait mais on comprendrait vite que cela n'est dû qu'à la très grande complexité du phénomène et des mécanismes qui le constituent. Cependant de grandes avancées ont été faites ces dernières décennies dans l'amélioration des moyens de diagnostic des premiers instants de la décharge et donc dans l'étude des mécanismes d'initiation [3-5]. Cela a permis d'accroître les connaissances sur le phénomène.

Dans ce chapitre, nous élaborerons quelques théories sur les mécanismes d'initiation d'une décharge électrique dans l'air. Nous traiterons tout d'abord la décharge dans les gaz, en élaborant sommairement les théories allant des électrons primaires jusqu'à la décharge couronne.

#### I.2. Électrons primaires

Il est tout à fait bien connu qu'aucune décharge électrique ne peut s'initier dans l'air sans la présence d'au moins un électron dans le volume de gaz couvrant l'espace inter-électrodes. Ces électrons, présents au tout début de la décharge sont communément appelés électrons germes ou encore électrons primaires. Ils permettent d'initier la première avalanche électronique sans laquelle aucun type de décharge ne peut prendre forme encore moins se maintenir. Ils peuvent être produits par radiation cosmique, par les sources naturelles d'ionisation, par les charges résiduelles issues des décharges précédentes ou encore par détachement des ions négatifs par effet de champ [4].

#### I.3. Ionisation, recombinaison et attachement électronique

L'existence d'une décharge électrique résulte du passage d'un courant dans le diélectrique gazeux et donc de la possibilité de créer des particules chargées ; essentiellement des électrons ; à partir des atomes ou molécules neutres du gaz [6]. Les principaux mécanismes régissant la génération des porteurs de charge dans les gaz sont: les mécanismes d'ionisation, tendant à augmenter leur densité et les mécanismes de recombinaison et d'attachement, tendant à les réduire.

Le procédé principal d'ionisation résulte des impacts d'énergie élevée entre les électrons et les atomes.

$$A + e^{-} \longrightarrow A^{+} + 2e^{-}$$

Lorsqu'un atome (ou une molécule) a absorbé suffisamment d'énergie pour qu'un de ces électrons s'échappe a l'infinie, on dit que cet atome (ou cette molécule) a été ionise, son énergie interne s'est accrue de l'énergie d'ionisation.

 $A + hv \longrightarrow A^+ + e^-$ 

L'attachement électronique est d'autant plus important que la molécule présente une plus grande affinité électronique. Le processus d'attachement des électrons est le suivant :

$$A + e^{-} \longrightarrow A^{-} + hv$$
  
 $A + B + e^{-} \longrightarrow A^{-} + B^{*}$ 

B<sup>\*</sup>: atome excité par l'énergie libérée lors de l'attachement de l'électron avec l'atome A

La recombinaison a été beaucoup moins étudiée que son processus inverse, l'ionisation. Cependant elle reste d'une importance fondamentale pour la bonne compréhension des mécanismes de développement de la décharge et tout particulièrement pour ceux de sa phase d'extinction [3]. La recombinaison est la neutralisation d'un ion positif par capture d'un électron ou d'ion négatif suivant le schéma ci-dessous.

 $A^+ + B^- \longrightarrow AB + hv$ 

#### I.4. Décharge de Townsend et critère d'auto-entretien de la décharge

L'énergie cinétique d'un électron détermine sa capacité à exciter ou à dissocier les molécules du gaz plasmagène. L'énergie acquise par un électron placé entre deux électrodes dépend de son libre parcours moyen et du champ électrique auquel il est soumis (E=V/d dans le cas d'un champ uniforme, V étant la différence de potentiel appliquée entre les deux électrodes tandis que d représente la distance inter électrode). L'obtention d'un nombre d'électrons suffisant pour exciter le gaz de façon significative exige un mécanisme de multiplication. Si l'énergie d'un électron est supérieure à l'énergie d'ionisation d'une molécule M, alors un choc inélastique est susceptible de libérer un électron, ce que traduit l'expression suivante :

$$M + e^{-} \longrightarrow M^{+} + 2 e^{-}$$

Les deux électrons obtenus par ionisation sont alors accélérés par le champ électrique et peuvent à leur tour ioniser de nouvelles molécules. Townsend a proposé en 1914 l'introduire d'un coefficient d'ionisation  $\alpha$  (appelé premier coefficient de Townsend) pour traduire mathématiquement ce phénomène d'ionisation [7]. Ce coefficient dépend du champ réduit E/N (avec N désignant la densité du gaz) et son inverse  $1/\alpha$  représente le libre parcours moyen d'un électron entre deux collisions ionisantes. L'apparition d'un électron primaire au niveau de la cathode se traduit par l'arrivée de  $e^{\alpha d}$  électrons au niveau de l'anode. Ce processus est appelé "avalanche électronique". La relation de Townsend s'écrit alors :

$$\mathbf{I} = \mathbf{I}_0 \cdot \mathbf{e}^{\alpha d}$$

avec I: courant (A)

- I<sub>0</sub> : courant initial dû aux électrons primaires (A)
- *d* : distance inter-électrode (m)
- $\alpha$  : premier coefficient de Townsend (m<sup>-1</sup>)

La probabilité de produire des électrons secondaires se traduit par l'introduction d'un second coefficient de Townsend  $\gamma$ . Le critère d'auto-entretien de la décharge (nombre adimensionnel) s'écrit alors :

$$\gamma .(e^{\alpha d}-1) = 1$$

C'est le critère de Townsend

#### I.5. Loi de Paschen

La tension d'alimentation minimale pour déclencher la décharge est appelée tension de claquage. Il existe une relation qui lie la valeur de cette tension de claquage à la pression du gaz et de la distance inter-électrode : la loi de Paschen. Cette loi est habituellement représentée par la courbe caractéristique  $U_c = f$  (p.d), (figure I.1) où p est la pression et d la distance inter-électrode, et dépend de la nature du gaz introduit.



Figure I.1 : Tension de claquage pour différents gaz en fonction du produit p.d [8].

Nous pouvons constater que pour un gaz à pression atmosphérique les courbes passent par un minimum pour une distance inter-électrode d'environ 10  $\mu$ m (p.d = 0,5 à 5 environ). Cela signifie que, pour la production de décharges à pression atmosphérique dans des conditions d'utilisation usuelles (d  $\geq$  1 mm), la tension de claquage est une fonction croissante de la distance inter-électrode.

#### I.6. Les plasmas

Les plasmas sont désignés comme étant le quatrième état de la matière faisant suite dans l'échelle des températures aux trois états classiques : solide, liquide et gaz. Le terme de «plasma» (du grec « matière informe ») a été introduit la première fois en 1923 par les physiciens américains I. Langmuir et L. Tonks pour désigner, dans les tubes à décharge, certaines régions équipotentielles contenant un gaz ionisé électriquement neutre.

Ainsi, un plasma est définit comme étant analogue à un gaz mais constitué de particules chargées, d'ions et d'électrons tel que cet ensemble soit globalement électriquement neutre.

#### I.7. Caractéristique courant-tension et régimes de décharge

La caractérisation courant-tension de la décharge couronne est obtenue en faisant croître la tension appliquée à l'intervalle gazeux. Différents régimes de décharge sont alors parcourus (Figure I.5).



Fig.I.5: Caractéristique courant-tension d'un décharge couronne dans l'air a pression atmosphérique (configuration pointe-plan, distance interélectrode : 13 mm) [9].

Le premier régime (I) : le courant est très faible ( $I \le 10^{-12} \text{ A/cm}^{-2}$ ), dû à la présence d'ions issus de la radioactivité naturelle ou rayonnement cosmique. Dans ce cas, le champ électrique est trop faible pour assurer l'avalanche électronique.

Le second régime (II), qui se produit à partir d'une tension seuil  $V_0$ , traduit le déclenchement de l'avalanche électronique de Townsend mais ne répond pas encore au critère d'auto-entretien de la décharge. La décharge est qualifiée de non-autonome car elle dépend de processus d'ionisation externes pour donner naissance aux électrons germes. Pour ce régime, le courant augmente très fortement pour une très faible variation de la tension appliquée.

Pour le troisième régime (III) : ici la décharge ne s'éteint plus car la condition d'auto entretient est atteinte. La composante continue augmente avec la tension. Le quatrième régime (IV) : les courants de décharges deviennent très importants car toute l'énergie passe par un même canal préférentiel dans l'espace inter-électrodes. C'est le régime des décharges disruptives tel que les arcs électriques.

#### I.8. La décharge couronne

#### I.8.1. Mécanisme de décharge couronne

La décharge couronne représente l'ensemble des phénomènes liés à l'apparition d'une conductivité dans un gaz au voisinage d'un conducteur de faible rayon de courbure, les électrodes étant soumises à une différence de potentiel élevée. La décharge est classiquement établie entre une électrode active et une électrode passive (électrode reliée à la terre). L'électrode active est une pointe (ou un fil de petit diamètre) à laquelle on va appliquer un haut potentiel électrique tandis que l'électrode passive est une plaque ou une grille (Figure. I.6). On obtient alors une décharge couronne volumique.



Fig.I.6.Configuration pointe-plan

La dissymétrie des électrodes conduit à un champ électrique inhomogène dans l'espace inter électrodes. En l'absence de charge d'espace, Labergue [10] a établi une expression du champ électrique E(x) en fonction du potentiel appliqué à la pointe le long de l'axe de symétrie x:

$$E(x) = \frac{V}{(x+r/2)\ln\left[\frac{2d+r}{r}\right]}$$

Avec V le potentiel, d la distance inter-électrodes, r le rayon de courbure de la pointe et x l'abscisse du point considéré par rapport à l'extrémité de la pointe prise comme origine.

#### I.8.2. Cas d'une pointe positive

La décharge couronne positive est celle qui se produit quand la pointe est portée à un potentiel positif et la plaque à la terre. Dans ce cas, dans la zone de champ intense autour de la pointe, des électrons sont produits par photo-ionisation et sont accélérés vers l'anode (la pointe). Autour de celle-ci, se développe alors une région de forte ionisation : zone en pointillé sur la Figure I.7 [10].



Fig.I.7.Descriptif de la décharge couronne positive

Le phénomène est plus complexe dans ce cas parce que la zone du champ électrique intense n'est pas juxtaposée à la source des électrons. Les électrons qui sont au voisinage de la pointe produisent des avalanches, mais quand les électrons arrivent sur la pointe, ils ne produisent rien qui puisse entretenir le phénomène. La cathode ne joue pas le rôle de pourvoyeuse des électrons car cette cathode est située très loin de la zone où le champ électrique est intense. Si le champ est assez fort, les électrons germes produits sous l'action du rayonnement ultraviolet émis par une avalanche créent des nouvelles avalanches. Le champ est renforcé par l'avalanche, mais la formation d'une chaîne entre électrodes est peu probable, le champ devenant trop faible au voisinage de la cathode

#### I.8.3. Cas d'une pointe négative

Dans le cas où la pointe est portée à un potentiel négatif, il y a toujours création d'électrons par photo-ionisation et apparition de la zone d'ionisation autour de la pointe. Goldman et Sigmond [11] expliquent que les ions positifs alors créés reviennent rapidement à la cathode (Figure I.8). Des électrons sont extraits de la cathode par choc, chaque électron ainsi libéré produit une nouvelle avalanche qui s'en dégage. Ces avalanches ont une extension limitée. D'une part, le champ décroît rapidement dès qu'on s'éloigne de la pointe vers le plan collecteur. D'autre part, les avalanches qui se développent laissent derrière elles les ions positifs moins mobiles qui font écran entre les électrons et la pointe. Cette deuxième cause d'affaiblissement du champ vient renforcer la première

Un nuage d'ions positifs est formé par les avalanches d'électrons. Quand le nuage positif est développé de manière suffisante, les avalanches arrêtent de se produire parce que le champ est très affaibli au-delà. Les ions positifs sont attirés par la pointe, donc ils sont neutralisés par la pointe si bien que la zone positive dont nous avons vu la formation disparaît.



Fig.I.8. Descriptif de la décharge couronne négative

L'effet d'écran disparaît quand tous les ions positifs ont été captés par la pointe ; on a, à nouveau le champ initial et le phénomène recommence. Il a donc une allure cyclique, la durée du cycle étant égale au temps mis par la couche positive pour être balayée par la pointe [10].

#### **I.9.** Conclusion

Dans cette partie, nous avons présenté de manière bibliographique la décharge électrique dans les gaz, les phénomènes qui lui sont associés et la décharge couronne. Malgré les grandes avancées faites sur la décharge électrique dans le gaz, le phénomène reste assez complexe. Ceci est dû à plusieurs facteurs (la nature et la pression du gaz, le type de tension appliquée, la forme des électrodes) dont dépendent l'initiation et le développement des décharges.

## Chapitre II Décharges électriques de surface

#### **II.1. Introduction**

La connaissance des caractéristiques optiques et électriques des décharges surfaciques est d'un grand intérêt pour les applications industrielles. Ces caractéristiques sont nécessaires pour la conception et le dimensionnement des structures isolantes. En effet, outre l'aspect économique (coût), le choix des constituants d'une structure isolante mixte (c'est à dire d'un gaz et d'un matériau solide) se fait en fonction de la tension de contournement. À tension d'initiation des décharges similaires, la meilleure structure serait celle où les décharges surfaciques se développeraient le moins, c'est-à-dire celle où la longueur finale des décharges serait la plus courte.

La décharge électrique de surface désigne une décharge qui se produit en contact avec la surface d'un diélectrique solide placé dans un fluide isolant. On peut distinguer deux catégories de décharges se produisant à la surface d'un solide isolant :

- Les décharges à barrière diélectrique (DBD) (figure II.1) où les isolants gazeux et solide sont généralement en série entre les deux électrodes, la décharge se développe d'abord dans le volume du gaz avant qu'elle se propage sur la surface du solide.





- a) Système pointe-plan
- b) Système plan-plan

 Les décharges glissantes où les deux électrodes sont en contact avec la surface du diélectrique solide. La décharge électrique prend naissance et se développe dans le gaz en restant en contact avec la surface du solide isolant sur laquelle elle se propage (figure II.2).



Figure II.2. Système à décharges glissantes

#### II.2.Décharges électriques de surface

#### II.2.1. Décharges glissantes aux interfaces air/solide

Lorsque l'épaisseur du solide est assez grande pour empêcher une perforation en volume ou lorsque ce dernier est utilisé comme barrière dans un intervalle d'air, des décharges peuvent se propager sur la surface du diélectrique solide et le contourner. En se propageant, ces décharges peuvent creuser la surface du solide et laisser des traces telles des canaux ramifiés de faible diamètre appelées dans la forme globale " figures de Lichtenberg ". Ces figures prennent toujours naissance du côté de l'électrode acérée [12].

#### II.2.2. Caractérisation optique des décharges glissantes

Les décharges surfaciques ont été découvertes en 1777 [13], quand Lichtenberg découvre par le fait du hasard, la formation de petites figures de poudre sur une surface chargée d'électricité (figure II.3). Ces figures dites de Lichtenberg sont appelées aussi figures de poudre. Elles ont suscité un grand intérêt chez beaucoup de physiciens, non seulement parce que leurs formes diverses offrent l'un des plus beaux spectacles de la nature, mais aussi parce qu'elles ont initié la découverte des décharges électriques et qu'elles sont susceptibles de présenter une dimension fractale.

Pedersen [14] a été le premier à avoir étudié les figures dites de Lichtenberg où des photographies ont été utilisées pour l'étude des surtensions dans les lignes de transmission isolées au gaz. Merrill et Von Hippel [15] ont proposé une interprétation physique de leur mécanisme de formation, basée sur les théories modernes des décharges dans les gaz. Puis, cette technique a été utilisée par de nombreux chercheurs pour caractériser les décharges surfaciques (ou glissantes). Plusieurs tentatives d'explication du phénomène de ces décharges ont également été proposées [16,17].



Figure II.3. Figures originales de Lichtenberg 1777 [18].

Plusieurs auteurs ont utilisé par la suite les techniques photographiques pour la caractérisation des décharges [19]. L'une des techniques consiste à placer du papier photographique sur un échantillon isolant immergé dans un liquide diélectrique, et de développer le contenu en utilisant des techniques photographiques ordinaires, après une exposition à une décharge électrique. La technique de figures de poudre et du papier photographique sont des méthodes d'observation statiques, puisqu'elles ne permettent pas d'observer l'évolution temporelle des décharges glissantes. Néanmoins, elles restent toujours d'actualité parce qu'elles procurent beaucoup d'informations utiles à la caractérisation des décharges et ont largement contribué à la compréhension du phénomène.

Avec le développement des techniques de mesure et notamment l'amélioration de la résolution spatiale et temporelle des mesures optiques, l'étude des décharges glissantes à beaucoup progressé durant le trois dernières décennies. La technique d'ombroscopie est la plus utilisée [20-23] (figure II.4).

Elle consiste à éclairer la cellule d'essais par un faisceau lumineux puissant de courte durée (d'environ 1µs) pendant la propagation de la décharge. Les branches de celleci, qui ont un indice de réfraction différent de celui du liquide, vont alors dévier la lumière dans toutes les directions. En plaçant une caméra vidéo juste en dehors du faisceau lumineux on obtient une image par diffraction.



Fig. II.4. Figure de décharges surfaciques obtenues avec les techniques des plaques Photographique.

Hakim *et al* [24] ont été les premiers à expérimenter cette technique. Ils ont réalisé une source lumineuse par la décharge d'un condensateur préalablement chargé, dans un intervalle d'air. Le temps d'exposition correspond alors au temps effectif de la durée du flash (éclair) produit par le condensateur ( $\approx$ 1 µs). Leur tentative d'utiliser le même intervalle d'air pour produire une succession de flashs lumineux a échoué lorsqu'ils ont constaté qu'il était impossible de réduire le temps entre deux flashs successifs à moins de 50 µs. Par la suite, Farazmand [25] a amélioré le système optique et obtenu des images améliorées des décharges négatives dans l'hexane liquide.

D'autres techniques plus ou moins récentes permettent d'observer des décharges surfaciques sur un matériau solide en présence de gaz sous pression. La figure II.5 donne un exemple de décharge surfacique obtenue dans le SF6 à 0,3 MPa sur un échantillon en verre de 2 mm d'épaisseur.



Fig.II.5 Figure de Lichtenberg observée sur une interface verre/SF6 pour une impulsion de tension de 30 kVx1µs sous une pression de 0,3 MPa [26]

Le développement de la décharge peut être également suivi si le phénomène luimême émet de la lumière, ce qui est le plus souvent le cas. La luminosité du phénomène étant généralement très faible et sa vitesse très grande (> 1 km/s), on emploie un tube amplificateur de brillance couplé par fibre optique à une caméra vidéo CCD qui délivre une image permanente ou instantanée (exposition : quelques nanosecondes) [27]. On utilise également des caméras à balayage de fente (streak cameras) qui permettent de suivre en permanence le phénomène avec une très grande vitesse de balayage (1 cm/ns).

L'utilisation de cette technique facilite l'observation de l'évolution temporelle des décharges glissantes et le comportement dynamique de ses branches (figure II.6). Cependant, dans le cas des décharges glissantes, son utilisation est limitée aux décharges se propageant sur des matériaux solides transparents. Ce qui réduit considérablement le champ des investigations. Par ailleurs, il existe toujours un compromis entre la résolution temporelle et spatiale des enregistrements optiques. Ainsi, les images obtenues par ombroscopie sont difficilement exploitables pour la caractérisation morphologique des décharges glissantes.

17



Fig.II.6. Evolution temporelle des décharges glissantes obtenue par ombroscopie en polarité positive et négative [28].

#### II.2.3. Les lois de Toepler

Nous examinerons les lois empiriques qui régissent la propagation radiale des figures de décharges glissantes telles que les a formulées M. Toepler [29]. Lors de son étude, Toepler utilise deux électrodes (pointe-plane), séparées par une plaque de verre d'épaisseur (e), de permittivité relative  $\varepsilon_r$ . La pointe est alimentée par la décharge d'un condensateur à travers un éclateur. La durée du front de l'onde de tension est contrôlée par une résistance R disposée dans le circuit électrique.

En faisant varier très rapidement la tension appliquée à la pointe  $\left(\frac{dV}{dt} = 10^8 \ kV \ s\right)$ , il découvre l'existence de deux catégories d'étincelles distinctes :

- La première catégorie dite « gerbes polaires ». Les étincelles sont matérialisées par leur luminosité diffuse, à symétrie circulaire autour du pôle que constitue l'électrode pointue. En analysant ces gerbes polaires, il a remarqué que leur extension radiale est proportionnelle à la tension impulsionnelle V appliquée à l'électrode. D'où sa première loi :
- En polarité positive :  $\frac{V}{r} = 5,5kV/cm$
- En polarité négative :  $\frac{V}{r} = 11,5kV/cm$

L'extension radiale de ces gerbes polaires est indépendante de l'épaisseur du diélectrique.

Il appela les étincelles de la deuxième catégorie « gerbes glissantes ». Elles apparaissent lorsque la tension appliquée sur l'électrode pointe dépasse un seuil critique V<sub>s</sub> qui est fonction de l'épaisseur et de la permittivité diélectrique de la plaque isolante. La valeur absolue de la tension V<sub>s</sub> est une fonction de la capacité surfacique du matériau diélectrique et suit une loi de la forme :

$$\varepsilon_0 \varepsilon_r \frac{Vs^2}{e} = Cste$$

Qui est la deuxième loi de Toepler.

#### II.2.4. Paramètres influençant les décharges de surface

#### II.2.4.1. Influence de la polarité de la tension sur la forme des décharges glissantes

D'une façon générale et indépendamment de la nature et de l'épaisseur du solide, deux types de décharges peuvent être observées selon la polarité de la pointe: [30]

- Les décharges surfaciques émanant d'une pointe négative, se distinguent par des branches rectilignes (figure II.7a). Elles sont constituées d'un tronc principal duquel émanent des ramifications arborescentes. Les extrémités des branches et leurs ramifications forment un contour plus ou moins circulaire, centré sur la pointe. Les branches de la décharge négative, appelés aussi « streamers », sont plus lumineuses à leurs bases qu'à leurs extrémités où on remarque la présence de points lumineux, témoins d'une intense activité d'ionisation.
- Les décharges générées à partir d'une pointe positive ont une forme différente des décharges négatives (figure II.7b). Les branches de la décharge ont une structure sinueuse et ramifiée et les ramifications se terminent par des points très lumineux en forme de bourgeon à leurs extrémités. Notons la présence de branches ayant la forme de filaments faiblement lumineux, émanant des points lumineux ou « bourgeons ». Le contour formé par l'extrémité des branches prend une forme aléatoire à la différence des décharges négatives qui ont un aspect quasi circulaire.





Figure II.7. Photographie de décharges glissantes obtenues sur une interface huile/bakélite sous tension impulsionnelle d'amplitude 40 kV (valeur crête) pour les deux polarités : (a) polarité négative, (b) polarité positive. [30]

## II.2.4.2. Influence de la nature et de l'épaisseur du solide isolant sur la forme des décharges glissantes

Kebbabi [30] a montré que indépendamment de la longueur finale des décharges, la forme des décharges glissantes sous tension impulsionnelle négative dépend fortement de la nature et de l'épaisseur du solide isolant, comme le montre la figure II.8. L'aspect général change selon le matériau utilisé et la densité totale de branches dépend fortement de l'épaisseur du solide isolant.



Figure II.8. Photographies de décharges glissantes obtenues sous tension impulsionnelle
négative, avec des échantillons en Bakélite de différentes épaisseurs :(A) 2mm, U<sub>crête</sub> = 44 kV,
(B) 10mm, U<sub>crête</sub> = 53 kV et (C) 20 mm, U<sub>crête</sub> = 58 kV.

### II.2.4.3. Influence de la nature et de l'épaisseur du solide isolant sur la longueur finale des décharges glissantes

Les streamers qui prennent naissance au voisinage immédiat de la pointe, se propagent radialement sur la surface du solide et s'arrêtent à une certaine distance de la pointe qu'on appelle longueur finale  $L_f$ . Cette dernière dépend de l'amplitude de la tension appliquée, de l'épaisseur et de la nature du solide isolant. L'évaluation de  $L_f$  des décharges glissantes est effectuée par la mesure de la distance entre la pointe et le contour circulaire formé par l'extrémité des branches formant la décharge.

#### II.2.5. Dégradation de la surface du solide

La répétition d'essais engendre la dégradation de la surface du solide isolant et la perte partielle de ses propriétés diélectriques. Ainsi, pour une tension donnée, les décharges observées sur un échantillon soumis à des contraintes répétitives, ont une longueur finale relativement élevée comparée à celle générées sur des échantillons neufs. Et la multiplication des décharges sur le même échantillon, conduit immanquablement au contournement de ce dernier à des amplitudes de tension relativement basses. Toutefois, la dégradation de surface dépend fortement de la rigidité diélectrique du solide isolant, du nombre de décharges et de l'amplitude de la tension.

#### II.2.6. Similarité de la décharge glissante avec la décharge de foudre

Le claquage diélectrique dans les gaz, les liquides et les solides isolants se manifeste souvent par la propagation de multiples canaux qui forment des arborescences complexes et diversifiés. La foudre et les décharges surfaciques sont les exemples les plus répandus. Leur structure générale montre une grande similitude entre les différents types de décharges. En effet, en plus de cette ressemblance à caractère optique, les deux décharges ont la capacité de se propager sur de longues distances sous l'effet d'un champ électrique faible par rapport au champ disruptif. Cela suggère que la formation des branches des différents types de décharges peut être gouverné par une loi universelle faiblement sensible aux détails physiques du phénomène. Ce type d'universalité, peut largement simplifier la classification et la description du phénomène de la décharge.

#### II.3. Les décharges à barrière diélectrique

On appelle décharge à barrière diélectrique (DBD), toute configuration de décharge pour laquelle, l'une ou les deux électrodes sont recouvertes d'un diélectrique. Celui-ci peut être constitué de verre, de céramique, d'alumine ou d'une matière polymère de type PVC par exemple. De manière générale, dans ce type de décharge, l'une des deux électrodes est reliée à la terre, l'autre est reliée à l'alimentation électrique. En configuration diélectrique simple, c'est l'électrode reliée à la terre qui supporte le diélectrique. Deux types de (DBD) peuvent être distingués.

#### II.3.1. Décharges à barrière diélectrique volumique

Les décharges à barrières diélectriques volumiques utilisent généralement des tensions alternatives à valeur moyenne nulle. Elles s'établissent entre deux électrodes séparées l'une de l'autre par un isolant [10].

#### II.3.1.1. La décharge à barrière diélectrique silencieuse

C'est la première à être observée, la DBD, également appelée décharge silencieuse peut créer un plasma non thermique très actif dans une large gamme de pression et a été largement utilisée comme source d'UV [31]. Le diélectrique joue le rôle d'un condensateur en série avec le plasma, ce qui a un effet stabilisateur conduisant à un grand nombre de micro décharges et de petites impulsions dans tout l'espace inter-électrodes [10].

#### II.3.1.2. La décharge lumineuse homogène

Les décharges luminescentes à pression atmosphérique, ont récemment attiré l'attention des chercheurs parce qu'elles présentent un intérêt particulier dans beaucoup de disciplines scientifiques comme la chimie analytique, la biologie, la médecine et les technologies de reproduction d'images [32]. Ce type de décharge peut être obtenu dans l'air à pression atmosphérique en appliquant des champs électriques de quelques dizaines de kV/cm à des fréquences de l'ordre du kHz et avec des distances inter-électrodes de 0,5 à 3 cm.

#### II.3.2. Déchargés à barrière diélectrique surfacique

A la fin des années 90 aux Etats-Unis, Roth [33], a mis au point une nouvelle configuration de décharge à barrière diélectrique de surface. L'objectif est d'appliquer sa décharge comme actionneur pour contrôler un écoulement. Cette décharge est établie entre au moins deux électrodes placées de part et d'autre d'un diélectrique: Elle est dite surfacique car il n'y a plus, comme précédemment, d'espace gazeux entre les électrodes (le diélectrique occupe tout l'espace inter-électrodes).

Les électrodes sont des plaques très fines est distantes de quelques millimètres. Une haute tension sinusoïdale à valeur moyenne nulle est appliquée entre les électrodes posées sur la face supérieure du diélectrique et l'électrode de face inférieure reliée à la terre.

#### II.3.3. Influence de l'introduction d'une barrière diélectrique dans l'intervalle d'air

L'introduction d'un solide diélectrique dans l'espace inter électrode permet, dans le cas d'un champ divergent, d'améliorer la tenue diélectrique du système. La barrière est d'autant plus efficace qu'elle est proche de l'électrode acérée (c'est-à-dire celle dont le rayon de courbure est le plus faible).

#### II.3.3.1. Influence de la position de la barrière

La position optimale de la barrière, dans un système d'électrodes pointe – plan, se trouve entre 0 et 20% de la distance inter électrode. La position optimale exacte a été déterminée expérimentalement en fonction de la géométrie des électrodes par A. Beroual *et al* [34].

#### II.3.3.2. Influence de l'épaisseur de la barrière et de la permittivité

La permittivité et l'épaisseur de la barrière ont une influence sur la distribution des porteurs de charges positifs et sur la tension à la surface de la barrière. Quand ces deux paramètres ont des valeurs importantes, le champ entre la barrière et le plan devient de plus en plus uniforme. Le courant diminue de façon quasi-linéaire avec l'augmentation de l'épaisseur de la barrière isolante pour les deux polarités, mais la diminution est moins importante pour les impulsions négatives [35].

#### II.3.4. Applications des décharges à barrière diélectrique

Dans cette section nous allons évoquer quelques usages des DBD, en commençant par la plus ancienne : la production d'ozone.

#### II.3.4.1. Production d'Ozone

L'ozone sert essentiellement au traitement de l'eau, en éliminant les bactéries, les virus et les odeurs désagréables. La production d'ozone «  $O_3$  » à pression atmosphérique, est réalisée à partir de l'air (~  $4N_2 + O_2$ ), de l'oxygène (moléculaire à son état fondamental) «  $O_2$  », ou d'autres mélanges gazeux composés d'oxygène et d'azote «  $N_2$  » (moléculaire à son état fondamental).

#### **II.3.4.2.** Traitement des gaz

La configuration de DBD mise au point pour la production d'ozone, est également appliquée à la décomposition des gaz toxiques (entrant dans « l'ozoniseur » au lieu de l'oxygène) comme le sulfure d'Hydrogène  $H_2S$  [36], par des collisions avec : des électrons, des radicaux, des ions ou des photons (rayonnement UV).

 $e + H_2S \longrightarrow H_2 + S + e$ 

Aujourd'hui, la DBD est objet d'étude dans la destruction des gaz d'échappement toxiques, comme le monoxyde de carbone CO, les oxydes d'azote  $NO_x$  et dans la réduction des émissions à effet de serre, comme le dioxyde de carbone CO2, responsables du réchauffement de la planète [37].

#### II.3.4.3. Traitement de surfaces

Grace à la caractéristique « homogène » des DBDs, elles sont utilisées dans la modification de surfaces ; un exemple est le traitement des plastiques, pour leur permettre de coller facilement ou d'être réceptifs à l'encre d'impression [38]. La DBD peut être facilement introduite dans le processus industriel de production de papier, en effectuant la décharge entre un rouleau qui fait tourner le papier et une électrode (parfois plusieurs) recouverte par un diélectrique.

#### II.3.4.4. Eclairage et écrans à plasma

Le contact entre l'électrode et le gaz dans les lampes, est la principale source de contamination du gaz et d'érosion des électrodes ; la DBD est une bonne solution à ce problème, et permet d'augmenter la durée de vie des lampes de nouvelle génération [39]. Elles permettent aussi l'élimination du mercure, qui est un élément dangereux pour la santé [40].

En ce qui concerne l'éclairage, les lampes à DBD, ont également l'avantage de pouvoir produire un rayonnement homogène à travers la surface des électrodes [41] ; cette propriété est exploitée pour les lampes d'éclairage de fond dans les écrans LCD.

Dans ces lampes DBD, le diélectrique externe (et parfois l'électrode externe qui est transparente) filtre l'UV, ne permettant que le passage de la couleur correspondante à une longueur d'onde visible. Cette longueur d'onde peut être choisie avec la substance fluorescente, ce qui est exploité dans la construction des écrans plats pour la télévision.

#### **II.4.** Les décharges partielles

Il est connu depuis de nombreuses années que les décharges partielles affectent gravement les isolants solides. Elles prennent naissance aux bords des électrodes ou dans des inclusions ou cavités gazeuses que peut renfermer le matériau dès que la tension appliquée atteint la tension seuil correspondant au minimum de Paschen du gaz en présence (air ou autres). Leur action peut conduire à des transformations chimiques radicales (scission de la liaison moléculaire sous l'effet du bombardement électronique et ionique, échauffement local, création de radicaux,...) entraînant la dégradation du matériau voire sa défaillance, à la suite de l'un des processus suivants:

- Propagation à travers le matériau de canaux microscopiques (arborescence)
- Echauffement cumulatif par les décharges
- Cheminement superficiel ou contournement.

#### **III. 5. Conclusion**

Dans la première partie de ce chapitre nous avons donné quelques techniques de caractérisation des décharges surfaciques basées sur les expériences de Lichtenberg, ainsi que les lois de Toepler.

Dans la deuxième partie du chapitre, nous avons présenté les paramètres influençant les décharges de surface et les décharges à barrière diélectrique avec leurs domaines d'applications.

# Chapitre III Caractéristiques du courant de décharge de surface
#### **III.1. Introduction**

Dans ce chapitre, nous nous intéresserons à l'étude de la décharge superficielle en tension alternative 50 Hz. Nous décrirons d'abord le dispositif expérimental et les échantillons de polymère que nous avons utilisés pour effectuer nos essais. Nous analyserons dans la partie suivante les courbes de courant de décharge enregistrées à l'aide d'un oscilloscope à mémoire. Nous discuterons leur forme et amplitude. Nous étudierons l'influence de la tension appliquée, de l'épaisseur de l'isolant solide, de temps de vieillissement et de l'insertion de la couche d'air sur le courant de décharge maximum en deux polarités positive et négative. La charge associée à la décharge fera l'objet d'une étude en fonction de la polarité et de niveau de la tension appliquée.

#### III.2. Montage expérimentale

Le dispositif expérimental utilisé dans notre étude est montré dans la figure III.1. L'alimentation haute tension est assurée par un transformateur d'essai monophasé placé dans une cage de Faraday dont les caractéristiques sont : U = 100 kV, f = 50 Hz, P = 10 kVA. La variation de la tension se fait à l'aide d'un autotransformateur qui se trouve au niveau du pupitre de commande. Les décharges glissantes sont obtenues à l'aide de deux électrodes, l'une pointue et l'autre plane. L'électrode pointe est reliée à la borne haute tension du transformateur d'essai, et l'électrode plane à la terre. L'ensemble est placé dans l'air.

Pour éviter les effets de bord, nous avons arrondi les bords de l'électrodes plane de 3 cm de diametre. L'électrode haute tension est un cylindre de 3 mm de diametre qui se termine par une pointe de 0.3 mm de rayon de courbure.

Les échantillons de solide isolant que nous utiliserons sont de forme carrée (10cm×10cm) en poly méthacrylate de méthyle (PMMA). Pour chaque essai, nous utiliserons un échantillon différent.



Fig. III.1. Schéma du dispositif expérimental

Pour étudier le courant de décharge de surface, nous avons utilisé un oscilloscope à mémoire que nous avons branché aux bornes d'une résistance R de 940  $\Omega$ . L'oscilloscope de marque HAMEG 1507-2 a une bande passante de 150 MHz, une impédance d'entrée de 1 M  $\Omega$  et un taux d'échantillonnage de 200 MS /s. L'oscilloscope à mémoire offre l'avantage de faciliter l'acquisition de signaux de fréquence élevée. Les informations obtenues et enregistrées par l'oscilloscope sont transmises via une interface RS 232 à un ordinateur pour y être traitées.

Pour assurer la protection de l'oscilloscope contre une éventuelle surtension, nous avons placé des diodes Zener en tête bêche qui court- circuiteront la résistance de mesure R dés que la tension atteindra une valeur limite qui a été fixée à ses bornes. La tension d'entrée admise est de 400  $V_{MAX}$ .

L'oscilloscope est utilisé en mode dual pour visualiser simultanément la tension appliquée à l'échantillon et le courant de décharge et en mode single pour enregistrer la forme des impulsions de courant. Pour chaque niveau de tension nous enregistrerons en mode numérique l'impulsion de plus grande amplitude.

#### **III.3.** Essais préliminaires

Une fois le montage expérimental est prêt, nous devons alors faire quelques essais préliminaires dans un montage simple, pour cela nous avons mesuré la tension de la source d'alimentation fournie par le réseau (220V) (Figure.III.2), afin de se familiariser avec le logiciel fourni avec l'oscilloscope ainsi que ses différentes fonctions.

Les essais préliminaires sont nécessaires pour la mise en forme des essais expérimentaux, ils nous permettent de prendre une marge sécuritaire pour le matériel afin d'éviter le contournement de l'isolation solide qui risque d'endommager l'oscilloscope.

Lors des essais préliminaires, nous avons constaté la présence de parasites qui peuvent influencer les mesures, donc les fausser. Pour atténuer leur influence, à défaut de les éliminer complètement, nous avons mis à la même terre toutes les masses et nous avons utilisé des câbles coaxiaux.



Fig.III.2. Courbe de tension

# III.4. Courant de décharge de surface

# **III.4.1. Introduction**

Une explication du processus de décharge peut être obtenue à partir de l'étude de la forme de l'impulsion de courant de décharge. Avec le développement des techniques de mesure, il est possible d'obtenir les caractéristiques des impulsions de courant, ce qui nous permettra une meilleure compréhension du comportement de l'isolation, en particulier le processus de dégradation sous l'action des décharges électriques.

Dans cette partie nous présentons les résultats expérimentaux de l'étude des courants de décharge pour des échantillons de PMMA. En faisant varier la tension appliquée, l'épaisseur de la couche d'air et le temps de vieillissement nous mesurerons le courant maximum de décharge. Ces mesures sont faites pour plusieurs épaisseurs de l'isolant solide sous tension alternative en système pointe-plan.

# III.4.2. Mesure de courant maximum de décharge

Le courant associé aux décharges de surface est enregistré à l'aide de l'oscilloscope à mémoire. La tension instantanée d'essai est visualisée à travers la voie 1 et le courant de décharge instantané est envoyé dans la voie 2 de l'oscilloscope. La figure III.3 montre le courant de décharge avec deux composantes distinctes :

- Le courant capacitif du principalement à la présence de l'isolant solide entre les deux électrodes qui se comporte comme un condensateur ou capacité.



Fig.III.3. courbe de Tension et de courant de décharge

- Le courant impulsionnel qui est un courant actif dû aux décharges à la surface de l'isolant solide. Les impulsions de courant sont moins nombreuses mais elles ont une amplitude plus grande en alternance positive qu'en alternance négative.

Pour des tensions supérieures à la tension d'apparition des premières impulsions, on remarque que les impulsions se décalent du pic de tension tel que relevé aussi par [42,43].

Les impulsions de courant apparaissent (Figure.III.4) durant le premier cadran de chaque alternance positive et négative de la tension [44].



Fig.III.4. Courant de décharge

Le nombre et l'amplitude des impulsions augmentent avec la tension appliquée aussi bien en alternance positive que négative.

En alternance négative, nous avons remarqué qu'une décharge de forte intensité est souvent suivie par une autre d'intensité plus faible (Figure.III.5)



Fig.III.5. Apparition d'une décharge négative secondaire après chaque décharge négative de grande amplitude

Le même phénomène est observé par Y. Manabe et al. [45] en utilisant une haute tension impulsionnelle négative. D'autre part une perturbation ponctuelle de la tension appliquée se produit à chaque apparition d'une impulsion de courant de forte amplitude.

L'amplitude des impulsions varie dans une grande plage, c'est pourquoi nous nous intéresserons, pour chaque niveau de tension, aux impulsions de courant négative et positive ayant la plus grande amplitude. En fonction de la nature et des dimensions de l'isolant solide ainsi que de la tension appliquée, nous caractériserons ces impulsions maximales de courant par leur: amplitude, charge, temps de montée et temps de descente.

Nous enregistrons d'abord l'impulsion de courant maximale en utilisant le mode numérique d'acquisition de signaux de l'oscilloscope. En jouant sur la position du curseur du de déclenchement on détermine l'impulsion maximale pour chaque valeur de tension appliquée à l'échantillon. Pour choisir la polarité de l'impulsion à mesurer, il suffit de placer ce curseur au-dessus de la ligne de référence O volt pour la polarité positive et au-dessous pour la polarité négative en adoptant le mode de déclenchement front montant pour la première et front descendant pour la deuxième. Une fois L'impulsion maximale enregistrée et toutes les données la caractérisant (tableau des valeurs) transmises à l'ordinateur via l'interface RS 232, nous procédons au calcul de la charge par intégration en utilisant le logiciel de calcul Matlab. Nous déterminons également les temps de montée et de descente ainsi que l'amplitude de l'impulsion.

#### III.4.2.1. Forme des impulsions du courant de décharge

Les figures III.6. et III.8 montrent la forme des impulsions de courant positive et négative. Pour une même tension, l'amplitude des impulsions positives est plus grande que celle des impulsions négatives (Figure.III.9).

La période d'activité (temps entre l'apparition de la première impulsion et l'extinction de la dernière impulsion pendant une alternance) s'élargit quand la tension appliquée augmente. L'apparition par intermittence des décharges est due à l'accumulation puis la disparition de la charge sur le solide isolant. En effet, la charge qui s'accumule à la surface du solide réduit le champ électrique appliqué et la décharge s'éteint [1].



Fig.III.6. Impulsions de courant sous 10 kV

a) Positive

b) Négative

# III.4.2.2. Le temps de montée et de décente d'une impulsion de courant de décharge

Le temps de descente des impulsions positives et négatives diminue en fonction de la tension appliquée, alors que le temps de montée il reste pratiquement constant pour les deux polarités positive et négative (Figure III.7).

. Le temps de montée moyen des impulsions positives est supérieur à celui des impulsions négatives (Figure.III.8).



Fig III.7. Variation du temps de montée et de descente en fonction de la tension appliquée



Fig.III.8. Caractéristiques d'une impulsion de courant

- a) Positive
- b) Négative



Fig.III.9. Nombre et amplitude des impulsions en polarités positive et négative

# III.4.2.1. Influence de la tension appliquée sur courant maximum de décharge

Les figures III.4 et III.5 représentent le courant maximum de décharge en polarité positive et négative pour les épaisseurs respectivement de 3 et 5mm de PMMA.



Fig.III.4. Courant maximum de décharge en fonction de la tension pour une plaque de PMMA de 3 mm d'épaisseur



Fig.III.5. Courant maximum de décharge en fonction de la tension pour une plaque de PMMA de 5 mm d'épaisseur

Nous constatons que l'amplitude du courant augmente avec la tension appliquée pour les deux polarités. L'amplitude des impulsions positives croit légèrement avec la tension jusqu'à 10 kV. A partir de cette valeur de tension, la croissance du courant maximum de décharge est beaucoup plus importante. Tandis que l'amplitude des impulsions négatives varie relativement moins en fonction de la tension.

L'amplitude des impulsions positives est d'environ 2 à 4 fois plus grande que celle des impulsions négatives. Les figures III.6 et III.7 représentent la variation de l'amplitude du courant de décharge en fonction de la tension appliquée en polarité positive et négative respectivement pour différentes épaisseurs du solide isolant.



Fig.III.6. Courant maximum de décharge en fonction de la tension en polarité positive



Fig.III.7. Courant maximum de décharge en fonction de la tension en polarité négative

#### III.4.2.2. Influence de l'épaisseur de l'isolant solide sur courant maximum de décharge

Les figures III.8 et III.9 montrent que l'amplitude des impulsions de courant diminue avec l'augmentation de l'épaisseur du solide isolant pour les deux polarités, mais la diminution est plus importante pour les impulsions positives. Ceci montre que les décharges persistent à des tensions plus grandes en polarité négative, ce qui pourrait s'expliquer par le fait que les décharges apparaissent à des tensions plus faibles en polarités négative.



Fig.III.8. Courant maximum en fonction de l'épaisseur du solide isolant en polarité positive



Fig.III.9. Courant maximum en fonction de l'épaisseur du solide isolant en polarité négative

# III.4.2.3. Influence de l'épaisseur de la couche d'air sur le courant maximum de décharge

Nous avons fait varier l'épaisseur de la couche d'air entre la pointe de l'électrode haute tension et l'isolant solide de telle sorte que la décharge se produit dans le volume d'air avant d'atteindre la surface de l'isolant solide (Figure.III.10).



Pour une distance inter électrodes de 6 mm, nous avons utilisé une plaque de PMMA de 3 mm en série avec une couche d'air de 3mm ensuite une autre plaque de PMMA de 3mm en série avec une couche d'air de 5mm.

Nous constatons que pour une épaisseur donnée de la couche d'air (3 mm ou 5 mm), l'amplitude des impulsions de courant augmente avec la tension appliquée pour les deux polarités (Figures.III.11 et III.12).

Le courant maximum de décharge diminue avec l'augmentation de l'épaisseur de la couche d'air pour les deux polarités, mais la diminution est plus importante pour les impulsions positives. (Figure III.13 et III.14).



Fig.III.11. Influence d'une couche d'air de 3 mm sur le courant maximum de décharge



Fig.III.12. Influence d'une couche d'air de 5 mm sur le courant maximum de décharge



Fig.III.13. Influence de l'épaisseur de la couche d'air sur le courant maximum de décharge en polarité positive



Fig.III.14. Influence de l'épaisseur de la couche d'air sur le courant maximum de décharge en polarité négative

### III.4.2.4. Influence de la position de l'interface sur le courant maximum de décharge

Pour une distance inter électrodes constante de 6 mm, nous avons utilisé successivement des plaques de PMMA de 6 mm, 5 mm, 4mm et 3 mm. Nous avons relevé l'amplitude maximum des impulsions de courant en polarité positive en fonction du rapport g/d (g : épaisseur de l'intervalle d'air et d : distance inter électrodes) (Figure III.15)

L'amplitude maximum des impulsions de courant diminue en passant de g = 0 mm à g = 1 mm puis croit avec l'épaisseur de l'intervalle d'air. Lorsque la décharge se développe sur la surface du solide isolant (g = 0 mm), la multiplication électronique est favorisée par l'émission secondaire du diélectrique. A partir de g = 1 mm l'amplitude des impulsions croit de façon quasi linéaire avec

la diminution de l'épaisseur du solide isolant. En polarité négative, le courant diminue aussi en passant de g = 0 mm à g = 1 mm, mais il reste quasi constant quant l'épaisseur de l'intervalle d'air augmente et que celle du solide diminue (Figure III.16).



Fig III.15.Courant maximum de décharge en polarité positive en fonction de la position de l'interface air-solide



Fig. III.16.Courant maximum de décharge en polarité négative en fonction de la position de l'interface air-solide

# III.4.2.5 Influence de temps de vieillissement et l'état de surface du diélectrique sur le courant de décharge

Un vieillissement sous décharges d'une plaque de PMMA de 3 mm en série avec un intervalle d'air de même épaisseur a montré que le courant de décharge augmente avec la durée du vieillissement (Figure.III.17). Pour étudier l'influence de la dégradation de la surface du diélectrique sur le courant de décharge, nous avons procédé à trois essais sur un échantillon de PMMA de 4 mm d'épaisseur en série avec un intervalle d'air de 2 mm d'épaisseur : le premier essai avec une surface vierge, le deuxième avec une surface usée avec du papier de verre et le troisième avec une couche conductrice déposée sur le PMMA audessous de la pointe haute tension. La figure III.18 montre que le courant de décharge présente les plus grandes valeurs dans le cas de la surface conductrice et les plus faibles pour l'échantillon vierge. Le nombre d'impulsions de courant augmente aussi quand la surface devient conductrice. Les charges d'espaces s'évacuent plus facilement dans ce cas et leur effet inhibiteur sur le champ appliqué est réduit



Fig.III.17. Influence de temps de vieillissement sur le courant maximum de décharge



Fig.III.18 Courant de décharge en fonction de la tension pour différents états de surface du PMMA

# III.4.3 Charge associée à la décharge électrique

#### **III.4.3.1 Introduction**

La charge superficielle a toujours une influence sur le phénomène de claquage de l'isolant soumis à un champ électrique élevé [46]. Les modifications chimiques induites par les décharges à la surface du solide isolant dépendent de la charge produite [47].

Plusieurs méthodes sont utilisées pour mesurer la charge superficielle : figures de Lichtenberg [48], sonde électrostatique [49], effet Pockels (méthode électro-optique) [5], etc.

# III.4.3.2 Evaluation de la charge associée à une impulsion maximum de courant

A défaut de mesurer directement la charge superficielle, nous avons utilisé une méthode indirecte pour l'évaluer en recourant à l'enregistrement de la courbe de courant impulsionnel puis au calcul de la charge par intégration.

Une fois l'impulsion maximale enregistrée et les données la caractérisant (tableau des valeurs) transmises à l'ordinateur via l'interface RS 232, nous procédons au calcul de la charge par intégration de I(t) en utilisant la méthode des trapèzes sous le logiciel Matlab.

La charge représente le nombre d'électrons qui, lors du développement des avalanches électroniques, sont recueillis ou émis (suivant la polarité) au niveau de l'électrode haute tension. Le courant de décharge à la surface de l'isolant solide sera transmis à la terre à travers la résistance de mesure après avoir traversé l'isolant solide sous forme d'un courant de déplacement. L'intensité étant définie comme le nombre de charges électriques traversant un circuit par unité de temps, la charge impulsionnelle est calculée comme suit :

$$Q = \int_{\Delta t} I(t) . dt$$

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

La charge impulsionnelle est donc donnée par le calcul de l'aire des impulsions de courant. Nous avons calculé pour les deux polarités, négative et positive, la charge électrique des impulsions.

Les figures III.16 et III.17 montrent la variation de la charge maximale de l'impulsion de courant en polarités positive et négative en fonction de la tension pour les deux valeurs du rapport g/d. La charge maximale positive et négative augmente avec l'augmentation de la tension, en polarité positive la charge maximale est plus importante quand le rapport g/d augmente. On voit le contraire pour la polarité négative.



Fig.III.16 Charge maximale en fonction de la tension appliquée g/d = 1/2



Fig.III.16 Charge maximale en fonction de la tension appliquée g/d = 1/3

#### **III.5.** Conclusion

Dans ce chapitre nous avons montré que les impulsions de courant associées aux décharges augmentent en nombre et en amplitude avec la tension appliquée. Leur amplitude est plus grande en polarité positive.

L'insertion d'une couche d'air en série avec le solide isolant fait croitre le courant maximum de décharge en deux polarités. Pour une même distance inter électrodes, les impulsions de courant présentent une amplitude d'autant plus grande que le rapport entre l'épaisseur d'air et la distance entre électrodes est grand. Alors qu'en polarité négative, le courant varie peu avec l'épaisseur de la couche d'air. Ceci est dû à la formation sur le solide isolant d'une charge négative qui crée un champ qui s'oppose au champ appliqué.

L'amplitude des impulsions de courant diminue avec l'augmentation de l'épaisseur du solide isolant pour les deux polarités, mais la diminution est plus importante pour les impulsions positives. Le courant maximum de décharge augmente avec l'augmentation de temps de vieillissement pour les deux polarités positive et négative.

La charge maximale associée à la décharge augmente avec la tension appliquée pour les impulsions positives et négatives.

# Chapitre IV Analyses physico-chimiques et interprétations

#### **IV.1. Introduction**

Les caractéristiques fondamentales des solides isolants sont déterminées par leurs structures intrinsèques, mais les phénomènes superficiels sont intimement liés aux conditions de l'interface. Les processus physico-chimiques responsables de la dégradation de ces isolants sous contraintes électriques ne sont pas encore bien connus [51,52]. Peu de travaux ont permis d'expliquer les mécanismes fondamentaux et les phénomènes de dégradation de l'isolant soumis aux décharges surfaciques. Une étude à l'échelle moléculaire est nécessaire afin de caractériser les surfaces de ces matériaux, de les contrôler et d'améliorer leurs performances.

Il existe deux types d'analyse des phénomènes superficiels :

- Caractériser les formes d'une surface, des objets adsorbé et les localiser,
- Déterminer la composition chimique de la surface et de ces adsorbats.

Nous avons réalisé ces deux catégories d'analyse grâce à la microscopie et la spectroscopie qui nous ont permis d'obtenir des informations sur la topographie de la surface (MEB : Microscope Electronique à Balayage) et sur la constitution élémentaire et quantitative des couches superficielles du nanomètre à quelques dizaines de micromètres (analyses EDS : Spectroscopie à Energie Dispersive ou à rayons X).

Dans ce chapitre, nous présenterons les propriétés principales des polymères. Nous donnerons le principe de fabrication du poly méthacrylate de méthyle (PMMA). Nous analyserons ensuite, à l'aide des techniques présentées ci-dessus, les effets des décharges de surfaces sur les propriétés physico-chimiques de la surface du diélectrique solide.

#### IV.2. Définition d'un polymère

Un polymère est une macromolécule formée de l'enchaînement covalent d'un très grand nombre d'unités de répétition qui dérivent d'un ou de plusieurs monomères (qui sont également appelées motifs) et préparée à partir de molécules appelées monomère [53].

Le nombre moyen de ces unités de base (monomères) dans les molécules finales (polymères) représente le degré de polymérisation. Si ce degré est élevé, on parle de hauts polymères par contre s'il est faible, le composé est une oligomère [54].

Le nom des polymères est généralement dérivé de celui du monomère en ajoutant le

préfixe poly Exemple : polyéthylène, poly (acide glycolique), polytétrafluoroéthylène, polyimide ....etc [55]. Une macromolécule est caractérisée par sa masse molaire M qui est en rapport avec le degré de polymérisation x représentant le nombre d'unités de la répétition dans la macromolécule par la relation suivante [56] :

 $M = x M_0$ 

où M<sub>0</sub> est la masse molaire de l'unité de la répétition.

#### **IV.2.2 Polymérisation**

Procédé de transformation d'un monomère en un polymère (polymérisation) ou d'un mélange de deux (ou plus) monomères en un copolymère (copolymérisation).

La réaction qui conduit à la formation des polymères est la polymérisation. Il existe de multiples types de polymérisation. Nous nous contenterons d'expliquer deux sortes importantes.

1. Polymérisation en chaîne: Les monomères s'associent sans réaction d'élimination simultanée. C'est le procédé le plus utilisé dans l'industrie: le polyéthylène, le polypropylène, le polystyrène, l'alcool polyvinylique et polytétrafluoroéthylène (Téflon) sont des exemples de polymères obtenus par polymérisation en chaîne. Comme toute réaction en chaîne, cette polymérisation comporte les étapes suivantes :

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

La polymérisation peut être radicalaire, cationique ou anionique selon la nature de l'espèce active.

2. Polymérisation par condensation : au cours de la polycondensation, les monomères s'associent avec élimination simultanée d'atomes ou de groupes d'atomes. Les polyamides, les polyesters et certains polyuréthannes sont des exemples typiques de polymères obtenus par polycondensation.

#### IV.2.3. Les propriétés diélectriques des polymères

#### IV.2.3.1. Résistivité superficielle

En tension continue la résistivité d'un diélectrique  $\rho_s$  est le quotient du gradient de potentiel en surface par le courant par unité de largeur.

La relation entre la résistance superficielle  $R_S$  et la résistivité correspondante  $\rho_s$  est donnée par la formule :

$$\rho_{\rm s} = R_{\rm S} * P/g$$

Où : P =  $\pi$  (D<sub>0</sub> + g) est le périmètre moyen entre l'électrode et la contre-électrode (Figure IV.2).



Fig. IV.1. Dimensions des électrodes

Pour que les polymères puissent être utilisé comme isolants ils doivent avoir une résistivité élevée, supérieure à  $10^{9}\Omega$ . cm [57].

#### IV.2.3.2. Rigidité diélectrique

La rigidité électrique est définie comme étant la valeur maximale du champ électrique que l'on peut appliquer à un isolant sans que se produise un claquage.

La rigidité intrinsèque du polymère peut atteindre plusieurs centaines de kV/mm, mais leur rigidité pratique est souvent limitée, elle varie pour les polymères les plus utilisés de 10 à 24kV/mm. Divers paramètres ont une influence sur la rigidité diélectrique tels que la forme de la tension appliquée, la température et l'épaisseur du solide isolant, ainsi que les caractéristiques électriques et thermique du milieu ambiant :

- Des décharges superficielles qui peuvent se produire dans l'air.
- La permittivité et la résistivité du milieu ambiant modifiant la répartition du champ électrique.

# IV.2.3.3. Permittivité et facteur de dissipation diélectrique

Un diélectrique est caractérisé par sa permittivité relative ou constante diélectrique  $\varepsilon_r$ . Dans le cas d'un diélectrique parfait,  $\varepsilon_r$  est le quotient de la capacité  $C_x$  entre deux électrodes, supposées noyées dans ce diélectrique, par la capacité  $C_v$  de la même configuration d'électrodes dans le vide:

$$\varepsilon_r = c_{x/c_v}$$

La permittivité absolue  $\varepsilon$  est le produit de la permittivité relative  $\varepsilon_r$  par la permittivité du vide

 $\varepsilon_0$ :  $\varepsilon = \varepsilon_r$ .  $\varepsilon_0$ .

 $(\epsilon_0 = 8,85. \ 10^{-12} \text{ F/m})$ 

La permittivité absolue définit la possibilité qu'un courant traverse un diélectrique, sous l'action du champ électrique. Ceci résulte de diverses contributions de déplacements des charges : déplacement des électrons, déplacements des atomes et des ions, orientation des dipôles électriques et déplacement des charges d'espace.

Les pertes diélectriques sont représentées par le facteur de dissipation  $tg\delta$ 

$$tg\delta = \frac{\varepsilon_r^{"}}{\dot{\varepsilon_r}}$$

Avec :  $\delta$  angle de pertes, c'est l'angle complémentaire du déphasage entre la tension appliquée au diélectrique et le courant qui en résulte.

### IV.2.4. Description du poly méthacrylate de méthyle (PMMA)

Le poly méthacrylate de méthyle (PMMA) connu sous le nom commercial d'Altuglas ou plexiglas, est un polymère thermoplastique rigide, cassant et à structure amorphe dont le monomère est le méthacrylate de méthyle (MAM) .Sa température de transition vitreuse est de 105 °C. Il présente, par rapport aux isolants classiques, l'avantage d'avoir des propriétés mécaniques meilleures, une mouillabilité plus faible, d'être plus légers et mis en œuvre plus facilement [58].

Sa chaine macromoléculaire est linéaire, avec des groupements latéraux volumineux (Figure. IV.2).



Fig.IV.2. Chaîne macromoléculaire de PMMA.

Il est préparé par deux procédés principaux :

• Transformation de la cyanhydrine de l'acétone en milieu sulfurique en sulfate de méthacrylamide, puis estérification après hydrolyse en présence de méthanol.

• Oxydation de l'isobutane en méthacroleine puis en méthacrylate de méthyle.

Les réactions suivantes montrent le principe du procédé de production du méthacrylate de méthyle.



# IV.2.5. Caractéristiques du PMMA

La température de transition vitreuse (Tg) du PMMA pur est de 85.5 °C, mais peut atteindre 129.2 °C avec un ajout de dopant [59].

Les caractéristiques électriques du PMMA sont données par le tableau IV.1.

Permittivité relative $\epsilon_r$	50 ou 60 Hz	3,0 à 4,0
	1 kHz	3,0 à 3,5
	1 MHz	2,7 à 3,2
Angle de pertes tg $_\delta$	50 ou 60 Hz	4. 10 <sup>-2</sup> à 5.10 <sup>-2</sup>
	1 kHz	3. 10 <sup>-2</sup> à 5.10 <sup>-2</sup>
	1 MHz	2. 10 <sup>-2</sup> à 3.10 <sup>-2</sup>
Rigidité diélectrique		15 à 20 kV/mm
Résistivité superficielle		$10^{15}$ à $10^{16}\Omega$
Résistivité transversale		$10^{15}$ à $10^{16}  \Omega.cm$

Tableau IV.1. Caractéristiques électriques du PMMA [60].

#### IV.3. Analyse par la spectroscopie d'impédance

Nous avons étudié la variation de la permittivité relative  $\varepsilon_r$  et le facteur de dissipation tg $\delta$  (angle de pertes) en fonction de la fréquence en utilisant un analyseur d'impédance modèle HP4284A muni d'une cellule de mesure de type HP16451B. Cet appareil nous permet de mesurer la résistance R, l'inductance L, le facteur de dissipation tg $\delta$  et la capacité C en fonction de la fréquence qui peut varier entre 20 Hz et 1MHz (Figure. IV.3).



Fig.IV.3. Vue de face de l'impédance mètre HP4284A.

Concernant la procédure de mesure, l'analyseur dispose de deux schémas équivalents correspondant respectivement à un mode parallèle (circuit parallèle Rp-Cp) et un mode série (circuit série Rs-Cs). Dans notre cas, le premier mode reste le mieux adapté car il correspond à une faible capacité.

#### IV.3.1. Influence de la fréquence sur la permittivité relative du PMMA

Dans nos essais, nous avons utilisé des échantillons de PMMA en forme de disque de 3 cm de diamètre et de 3 mm d'épaisseur. Les échantillons sont soumis au vieillissement électrique dans un système d'électrodes planes avec un diamètre de 2 cm. (Figure IV.4). Le champ électrique appliqué est de 5kV/mm. Le vieillissement électrique a entraîné la dégradation des surfaces des polymères. Cette dégradation constatée visuellement consiste en la formation d'une couronne blanchâtre sous forme d'anneau comme le montre les photographies de la figure IV.5. L'intensité et l'épaisseur de la couronne blanchâtre observée sur la surface est d'autant plus importante que le temps de vieillissement est important.



Fig IV.4. Système d'électrodes pour le vieillissement sous décharges du solide isolant





Fig.IV.5. Echantillons de PMMA : a) Vierge, b) et c) Vieillis 2h et 4h respectivement

La figure. IV.6 montre l'évolution de la permittivité relative en fonction de la fréquence et de la durée de vieillissement à température ambiante. La permittivité relative est déduite de la mesure de la capacité à l'aide de la relation suivante :

$$\varepsilon_{\rm r} = \frac{e.C}{S.\varepsilon_0}$$

avec

e : épaisseur de l'échantillon

C : la capacité entre les deux électrodes

S : la surface de l'échantillon

 $\varepsilon_0$ : la permittivité du vide,  $\varepsilon_0 = 8,85 \ 10^{-12} \text{ F/m}$ 



Fig.IV.6. Variation de la permittivité relative en fonction de la fréquence pour différentes durées de vieillissement

Nous remarquons que la constante diélectrique diminue avec l'augmentation de la fréquence, les courbes ont la même allure. Nous constatons que l'augmentation de la durée de vieillissement s'accompagne d'une diminution de la permittivité. Ce la peut être expliqué par le réarrangement de la structure moléculaire et le phénomène de réticulation.

#### IV.3.2. Influence de la fréquence sur le facteur de dissipation

Les valeurs de  $tg\delta$  sont relevées directement sur l'analyseur d'impédance mètre, la figure (IV.7) représente la variation du facteur de dissipation en fonction de la fréquence et de la durée d'application de la contrainte.

Nous constatons que  $tg\delta$  diminue avec l'augmentation de la fréquence et il augmente avec la durée d'application de la contrainte (champ électrique). 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 une concurrence de la scission des chaines et la recombinaison des chaines comprenant la réticulation. L'augmentation de la valeur de facteur de dissipation caractérise une augmentation de la mobilité macromoléculaire due aux scissions de chaines.



Fig.IV.7. Variation des pertes diélectriques en fonction de la fréquence pour différentes durées de vieillissement

# IV.4. Analyse microscopique

# IV.4.1. Constitution d'un microscope électronique à balayage (MEB)

La figure VI.8 montre les différentes parties constitutives du MEB et qui sont :

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



Fig.IV.8. Schéma de principe d'un microscope électronique à balayage (MEB) [61]

#### IV.4.2. Principe de fonctionnement du MEB

La microscopie électronique à balayage (MEB ou SEM pour Scanning Electron Microscopy en anglais) est une technique de microscopie électronique pour l'observation de la surface. Elle est basée sur le principe des interactions électrons-matière (Figure.VI.5). Un faisceau d'électrons est projeté sur l'échantillon à analyser. L'interaction entre le faisceau incident d'électrons primaires et l'échantillon génère principalement trois types d'émissions qui apportent différents types d'informations sur la matière dont est constitué l'échantillon :

#### - Les électrons secondaires

Ce sont des électrons peu liés de la bande de conduction de l'atome, éjectés lors de leur choc avec les électrons primaires du faisceau. Ce sont des particules de basse énergie. Ils sont accélérés vers un détecteur d'électrons secondaires qui amplifie le signal. À chaque point d'impact correspond un signal électrique. L'intensité de ce signal électrique dépend à la fois de la nature de l'échantillon au point d'impact et de la topographie de l'échantillon au point considéré. Ainsi, en balayant le faisceau sur l'échantillon, on obtient une cartographie de la zone balayée.

#### - Les électrons rétrodiffusés

Ce sont des électrons résultant de l'interaction des électrons du faisceau primaire avec des noyaux d'atomes de l'échantillon. Les électrons sont réémis dans une direction proche de leur direction d'origine avec une faible perte d'énergie. Ils permettent de mesurer l'homogénéité chimique d'un échantillon et son analyse qualitative.

#### - Les rayons X

L'impact d'un électron primaire à haute énergie peut ioniser un atome à une couche interne. La désexcitation, le remplissage de l'ordre énergétique de la structure électronique, se produit avec émission de rayons X. L'analyse de ces rayons permet d'obtenir des informations sur la nature chimique de l'atome.



Fig.IV.9. Signaux produits par l'interaction d'un électron primaire avec l'échantillon

Le MEB que nous avons utilisé est un appareil dit environnemental dans lequel l'échantillon reste à la pression atmosphérique. L'avantage que présente le microscope environnemental par rapport au microscope électronique ordinaire est de permettre l'analyse des surfaces isolantes sans qu'elles soient métallisées.
### IV.4.3. Préparation des échantillons

Afin d'assurer la reproductibilité et la précision des résultats, on usine des échantillons de même dimensions appartenant à une même plaque commerciale. On découpe des échantillons de PMMA sous forme de disques de 3 cm de diamètre et 3 mm d'épaisseur. Avant de procéder aux essais, chaque échantillon est bien nettoyé à l'éthanol puis séché dans le but de réduire les poussières et les impuretés fixées sur la surface.

# IV.4.4. Résultats expérimentaux et discussion

Nous avons analysé la topographie de la surface de l'échantillon soumis aux décharges couronne à l'aide d'un microscope à balayage électronique environnemental (ESEM) de marque Philips JOËL XL30 à filament de tungstène (Figure IV.10) qui fonctionne à des tensions d'accélération du faisceau électronique que nous pouvons faire varier de 0,2 à 30 kV. Le principe de fonctionnement de ce type de MEB évite l'accumulation de charges à la surface de l'isolant. Il permet d'observer des échantillons isolants sans préparation et est adapté à l'étude des échantillons biologiques d'où l'appellation « environnemental ».



Fig.IV.10. Photographie du microscope électronique à balayage ESEM XL 30 Philips

# IV.4.4.1. Topographie de la surface du solide isolant

# IV.4.4.1.1. Système pointe-plan

La figure IV.11 montre avec un agrandissement de 250x à 1000x les micrographes d'un échantillon vierge et des échantillons soumis pendant 8h, 12h, 16h et 20h aux décharges glissantes avec un système d'électrodes pointe-plan. L'échantillon vierge observé avec un agrandissement de 1000x, présente une surface lisse et homogène. Alors que les autres échantillons ayant subi un vieillissement sous décharges électriques montrent des dégradations avec apparition de fissures et la formation de cratères superficiels.











Fig.IV.11. Micrographes de la surface du PMMA (a) : échantillon vierge, et (b) ;(c) ;(d) et (e) vieillis sous décharges couronne respectivement durant 8h, 12h, 16h, et 20h.

### IV.4.4.1.2. Système sphère-plan

La figure IV.12 montre, avec un agrandissement variant de 150x à 1000x, selon les échantillons, les micrographies d'échantillons de PMMA. L'échantillon vierge présente une surface lisse, homogène exempte de toute dégradation. Pour les échantillons soumis aux décharges couronne pendant une durée allant d'une heure à 12 heures, nous pouvons observer pour des profondeurs d'analyse correspondant à la tension de 20 kV la topographie des zones ayant subi des dégradations. Un phénomène inhabituel est observé : des arborescences prennent naissance et se développent à partir de zones blanchâtres d'environ 35 µm de diamètre à la surface de l'échantillon. On pourrait expliquer la forme de ces figures par le fait qu'après avoir traversé l'intervalle d'air, chaque décharge en effluve constituerait un prolongement de l'électrode haute tension qui se pose telle une pointe sur l'échantillon de PMMA à la surface duquel se développent alors des arborescences. Ces traces laissées par les décharges en surface seraient dues à l'humidité puisqu'elles ne sont pas observées sur des échantillons secs [62]. A partir de 6h de vieillissement on voit une multitude de points blancs qui apparaissent, ce qui dénote de l'intensité de la dégradation du matériau.































Fig. IV.12. Micrographes de la surface du PMMA. (a) : échantillon vierge, les autres sont vieillis sous décharges couronne durant les durées allant de 30 minutes à 12 heures

### IV.4.4.2. Influence du temps de vieillissement sur la longueur finale des décharges

Nous avons mesuré les longueurs finales des arborescences par une méthode directe spécifique au MEB. Nous constatons que la longueur finale des décharges qui se propagent sur la surface du solide isolant augmente avec la durée de vieillissement (Figure IV.13).



Fig.VI.13. Variation de la longueur finale des décharges en fonction du temps de vieillissement

### IV.4.4.3. Analyse par diffraction des rayons X

Le MEB permet aussi de faire une analyse chimique des éléments contenus dans l'échantillon par une analyse EDS (Enegy Disersive X-ray spectroscopie). Cette analyse permet d'identifier les éléments qui constituent le solide isolant de façon qualitative et quantitative. La profondeur d'analyse dépend de la tension d'accélération du faisceau électronique [63,64].

Les spectres EDS de la figure IV.14 montrent que la quantité d'oxygène est plus importante sur l'échantillon soumis aux décharges électriques durant 8 heures que sur l'échantillon vieilli pendant 6 heures. Ceci indique que la surface du PMMA s'oxyde de plus en plus. L'analyse quantitative réalisée avec l'EDS montre une augmentation du taux oxygène/carbone avec le temps de vieillissement sous décharges électriques.

La présence de l'humidité augmente le taux d'oxydation de la surface de l'échantillon et diminue le taux de carbone (Tableau IV.1).

Tableau IV.1. Variation du taux O/C à la surface du PMMA soumis aux décharges électrique

Echantillons	Temps de vieillissement (heures)	Taux atomique	
		C (%)	O (%)
1. Sec	6	85,52	14,48
2. Sec	8	71,24	28,76
3. Humide	8	67,47	32,53

Des résultats similaires ont été trouvés pour d'autres matériaux [65].

L'augmentation du taux O/C montre que des liaisons C-O se cassent, un mécanisme purement photochimique a d'abord été considéré [66,67] : les photons absorbés ont suffisamment d'énergie pour induire la rupture des liaisons covalentes (C-O) et provoquer la dégradation du polymère. Bien que l'hydrogène existe dans la molécule de PMMA, il n'a pu être détecté par l'EDS à cause de sa faible teneur.





- a) Echantillon de PMMA vieilli pendant 6 heures
- b) Echantillon de PMMA vieilli pendant 8 heures

### **IV.5.** Analyse par spectroscopie infrarouge

### **IV.5.1. Introduction**

Au début des années 70, la spectroscopie infrarouge était, pour beaucoup, une technique vieillissante.

Basée sur des systèmes dispersifs (monochromateurs, grilles), cette technique ne permettait de recevoir qu'une seule longueur d'onde à la fois (celle du monochromateur) et donc les signaux détectés étaient très faibles. Ainsi, si on étudiait un échantillon sur  $400 \text{ cm}^{-1}$  -  $4000 \text{ cm}^{-1}$  avec une résolution de  $1 \text{ cm}^{-1}$ , on ne recueillait que 1/(4000 - 400) = 1/3600 du rayonnement initial.

Le renouveau de la spectroscopie infrarouge est venu avec les appareils à transformée de Fourier. L'avantage fondamental de cette méthode est qu'elle permet de recevoir en une seule fois toutes les fréquences infrarouges et donc permet un gain de temps important.

Cette méthode nous donne les transformations chimiques subies par le solide isolant: apparition ou disparition de groupements fonctionnels sous l'effet des décharges électriques. Nos analyses ont été faites à l'aide d'un appareil de type Shimadzu 8400 (figure IV.15).

Afin d'étudier, à l'aide de l'analyse FTIR, la dégradation superficielle du PMMA, nous avons confectionné des échantillons de ce matériau sous forme de films transparents de telle sorte que le rayonnement infrarouge puissent les traverser pour pouvoir analyser les transformations chimiques qui interviendrait suite à leur vieillissement par décharges électriques.



Fig.IV.15: FTIR-Shimadzu 8400

#### IV.5.2. Préparation des films de PMMA

Pour préparer les films, nous avons dissout des morceaux de PMMA d'épaisseur 3mm dans l'acétone ( $C_3H_6O$ ) jusqu'à l'obtention d'une solution (gel transparent). Ensuite nous avons étalé la solution obtenue sur des disques en verre que nous avons au préalable bien nettoyée.

Après quelques heures, l'acétone s'est évaporée et nous avons obtenu des films de PMMA ayant une épaisseur de l'ordre de quelques micromètres. Le film de PMMA placé sur un disque de verre de 5mm d'épaisseur, ce disque constitue une barrière diélectrique dont le rôle est d'éviter le passage à l'arc de la décharge entre les deux électrodes. Une tension de 12 kV est appliquée à l'électrode haute tension en forme de sphère de 6 mm de rayon, l'électrode plane étant mise à la terre. L'échantillon de PMMA, placé en série avec un intervalle d'air d'épaisseur g, est ainsi soumis à des décharges couronne dans un système sphère-plan (Figure IV.16).



Fig. IV.16. Système utilisé pour vieillir un film de PMMA sous décharges électriques.

### IV.5.3. Technique expérimentale

Nous avons mis le film de PMMA sous décharges électriques dans un système sphèreplan décrit ci-dessus. Après chaque deux heures de vieillissement, nous analysons à temps réel la surface dégradée du film avec un FTIR et nous le remettons sous décharges, ainsi de suite jusqu'à atteindre 18 heures de vieillissement. De manière générale, les groupements chimiques d'une molécule absorberont les infrarouges à des fréquences caractéristiques. En traçant le spectre d'un matériau et en se référant à des tables (Figure IV.17), il est possible d'obtenir des informations sur les groupements fonctionnels du matériau particulièrement ceux qui disparaissent et ceux qui se forment après vieillissement. Pour le PMMA nous avons utilisé le tableau IV.2 et la figure IV.18.



Fig.IV.17. Aperçu des longueurs d'ondes d'absorption pour les molécules organiques



Fig.IV.18. Spectre infrarouge de PMMA.

Groupement fonctionnel	Liaison	Fréquence [cm <sup>-1</sup> ]	Type de vibration
Acides	О-Н	3725-3500	élongation
-CH <sub>2</sub> -	С-Н	2925	élongation asymétrique
Esters	C=O	1780	élongation
Esters	C-0	1300-1000	élongation
Alcane	C-C	1000-1250	élongation
Alcène	C=C	1645	élongation
Aromatiques	С-Н	900-700	déformation

Tableau IV.2. Bandes d'absorption des groupements caractéristiques du PMMA

### IV.5.4. Analyse du spectre infrarouge

Pour obtenir le spectre d'un échantillon, on enregistre deux spectres des intensités transmises :

- Le premier, sans échantillon, il constitue le fond d'absorption ou le background.
- Le second, avec l'échantillon, pour obtenir le spectre traditionnel en % d'absorption.

Pour interpréter les spectres infrarouges on divise généralement le spectre en deux parties :

La section de droite (longueur d'onde l<1500 cm<sup>-1</sup>) est appelée « empreinte digitale » parce qu'elle comporte un très grand nombre de bandes aux formes variées. Si toutes les bandes de cette région se retrouvent dans deux spectres infrarouges aux mêmes positions et même intensité relative, on peut conclure avec confiance qu'il s'agit de spectres d'un même composé. Le nombre important rend cependant l'analyse de cette section passablement ardue. De plus, la nature des bandes qui se retrouvent dans cette région du spectre révèle plus d'informations structurelles. C'est pourquoi il est recommandé d'ignorer le côté droit du spectre et concentrer l'analyse sur le côté gauche.

La section de gauche (longueur d'onde l>1500 cm<sup>-1</sup>) comporte la plupart des bandes qui sont caractéristiques des groupements fonctionnels. La présence ou l'absence de ces bandes est généralement évidente et procure des informations structurelles importantes.

Le spectre FTIR de l'échantillon neuf est donné dans la figure IV.18. Dans le tableau IV.3, nous donnons les bandes d'absorption de l'échantillon et les groupements fonctionnels caractéristiques du matériau.



Fig.IV.18. Spectre IR de l'échantillon de PMMA neuf

Tableau IV.3 Bandes d'absorption caractéristique du PMMA soumis à des décharges de surface.

de vibration cm <sup>-1</sup>	Vibration caractéristique (bande)
4000 à 3300 cm <sup>-1</sup>	OH (associée : eau liquide)
3159,2 cm <sup>-1</sup>	C-H élongation
2940 à 3080 cm <sup>-1</sup>	C-H aromatique (styrène)
2855,4 cm <sup>-1</sup>	C-H symétrique
2731 et 2675 cm <sup>-1</sup>	C-H élongation
2500 à 2632 cm <sup>-1</sup>	С=О ( R-С-О-О-Н)
2360,7 et 2339,5 cm <sup>-1</sup>	$CO_2$
2185,2 et 1949,9 cm <sup>-1</sup>	C-O élongation
1900 à 1700 cm <sup>-1</sup>	C=O
1670,2 et 1600,8 cm <sup>-1</sup>	C=C stretching
1370 à 1027,9 cm <sup>-1</sup>	C-O
1005 à 900 cm <sup>-1</sup>	C-H vinylique (styrène)
921 cm <sup>-1</sup>	C-C-H déformation
844,7 cm <sup>-1</sup>	C-Cl élongation
769,5 et 705,9 cm <sup>-1</sup>	C-H aromatique

80 a) Vierge 10 5. 50 Transmission (%) 1 Ļ۵ 2 30 3 20 10 80 b) 18 h 10 60 Transmission (%) 50 40 30 ZD 1 🗖 3500 3000 2500 2000 1500 1000 500 40 0 0 Nombre d'onde (1/cm) Fig. IV.19 Spectre du PMMA

La figure IV.19 montre le spectre du PMMA vierge et vieilli sous décharges durant 18h.



Les analyses par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourrier ont été faites à l'aide d'un appareil de type Shimadzu 8400. Elles nous donnent les transformations chimiques subies par l'échantillon de PMMA : apparition ou disparition de groupements fonctionnels sous l'effet des décharges électriques. Le PMMA est un matériau qui absorbe de l'eau, ce que montrent les pics 1, 2, 3 qui apparaissent respectivement à 3440 cm<sup>-1</sup>, 3550 cm<sup>-1</sup> et 3650 cm<sup>-1</sup> (Figure IV.19).

L'analyse FTIR montre une diminution de la longueur des pics du spectre de l'échantillon soumis aux décharges couronne durant 18h. Ceci dénote de la diminution des fonctions correspondant à ces pics. La diminution de la fonction C=O conduit à la diminution du nombre de molécules d'eau qui lui sont associées, ce qui se traduit par la diminution du pic 3. Nous constatons aussi la formation d'une bande large à 3200 cm<sup>-1</sup> correspondant à la vibration de la liaison O-H du groupement hydroxyle qui est apparu à la surface du matériau. En effet, avec l'extraction du groupement OCH<sub>3</sub> sous l'action de l'énergie hv fournie par la décharge couronne et la participation de l'humidité ambiante, un hydroxyle OH va se lier au carbonyle C=O pour donner un carboxyle COOH [52].

### V. 6. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié les effets de la décharge électrique sur la surface du PMMA. La dégradation de la surface a été mise en évidence par les différentes techniques d'analyse utilisées.

Les images obtenues au microscope électronique à balayage (MEB) confirment que la surface du solide isolant à subi des dégradations.

Le système d'électrodes influe sur l'apparition des arborescences, en effet avec un système sphère-plan nous avons réussi à avoir des arborescences, alors que pour le système pointe-plan nous avons observé des dégradations de l'échantillon avec apparition de fissures et la formation de cratères superficiels. Notons aussi que la longueur finale des décharges dépend de la durée du vieillissement. Plus le temps de vieillissement est grand plus les décharges sont langues.

Les analyses effectuées avec l'EDS ont montré une nette augmentation de la quantité d'oxygène à la surface du matériau. L'analyse FTIR a mis en exergue la présence de groupements OH et également de bandes d'énergie associées à des groupements chimiques tels que C-O et C=O.

# Chapitre V Modélisation des mécanismes de dégradation

### **V.1. Introduction**

La durée en service des polymères est déterminée par leur stabilité à l'oxydation. En effet, à la suite d'un processus auto-oxydant, la structure moléculaire du polymère change, conduisant irrémédiablement à une chute de ses propriétés d'utilisation, le critère mécanique étant le plus souvent retenu.

Malgré l'utilisation des polymères de façon abondante dans de nombreuses applications industrielles (peintures, câbles d'isolation de centrales nucléaires, pièces dans le domaine aéronautique, etc.), il faudra attendre les années 1940 pour que soit établi le schéma « standard » encore utilisé de nos jours. Il s'agit d'une réaction radicalaire en chaîne qui est représentée par le schéma d'oxydation simplifié suivant [68] :

PH → P  $P + O_2 \rightarrow PO_2^{\circ}$   $PO_2^{\circ} + PH \rightarrow POOH + P^{\circ}$  $PO_2^{\circ} + PO_2^{\circ} \rightarrow produits inactifs + O_2^{\circ}$ 

(P) est un polymère donné.

### V.2. Modèle de mécanisme de formation des groupements OH

La structure du PMMA est représentée ci-dessous :



Les groupements hydroxyles OH se forment en deux étapes :

- 1er étape : la rupture de liaison C-O-CH<sub>3</sub> de l'ester qui se trouve au niveau des branches sous l'action de la décharge électrique.

- 2eme étape : l'ozone produit dans la décharge électrique arrache les atomes d'hydrogène des groupements méthyle (C-H) pour former des groupements OH avec la participation de l'humidité ambiante.



La dégradation superficielle par décharges électriques se produit par érosion dans un premier temps ensuite par des fissures et la formation de cratères superficiels [69,70]. L'érosion a lieu suite à une importante élévation de température locale due à un taux élevé de répétition de la décharge. L'énergie des électrons tombant sur le diélectrique est supérieure à 10 eV, ce qui provoque la rupture de liaisons moléculaires à la surface du solide et la formation d'ozone  $O_3$  dans l'intervalle d'air [71]. Un canal peut se développer dans le matériau à partir de points localisés sur la surface du solide [69,70]. Dans notre cas, c'est une arborescence qui se propage, non pas en volume, mais à la surface du solide.

### V.3. Processus de rupture diélectrique de l'isolation par décharges de surface

A partir du diagramme donné par Mason [72] et à la lumière des résultats que nous avons obtenus, nous établissons le diagramme ci-dessous (Figure. V.1) pour expliquer la rupture diélectrique d'une isolation air-solide exposée à des décharges couronne. Le temps nécessaire à cette rupture dépend de la fréquence, et de l'amplitude de la tension appliquée, des conditions ambiantes et des éventuelles contraintes mécaniques auxquelles l'isolation est soumise.



Fig.V.1. Diagramme de rupture par décharges de surface.

- (1) Erosion de la surface par bombardement par les ions de la décharge. La surface devient rugueuse, elle peut se couvrir d'humidité par adsorption de molécules d'eau. Des courants superficiels peuvent alors se développer, accélérer l'érosion et réduire l'hydrophobicité de la surface. On rentre ainsi dans un cercle vicieux qui conduira à une rupture par contournement. Sous le bombardement des ions, des trous peuvent aussi se former et se développer en arborescence qui va provoquer une rupture diélectrique.
- (2) Interaction des espèces (électrons énergétiques, ions, ozone) produites dans la décharge avec les molécules de la surface du solide isolant (C-H, C-H<sub>2</sub>, C-O-CH<sub>3</sub>,...). Cette interaction provoquera les processus suivants :
  - Rupture des liaisons C-C, C-O-CH<sub>3</sub>. La rupture de la chaine principale par cassure de la liaison C-C constitue une dégradation du matériau et la formation de produits de décomposition qui se déposeront à la surface du solide.
  - Oxydation de la surface du polymère par attachement de l'oxygène activé dans la décharge avec les atomes de carbone pour former des groupements carbonyles C=O [71].

Tous ces processus transformeront les propriétés physico-chimiques de la surface du solide isolant qui se dégradera à long terme [73].

# V.4. Dégradation du PMMA

La dégradation du PMMA a fait l'objet de nombreuses études. La plupart des travaux récents fournissent une bonne interprétation des phénomènes observés. Kashiwagi et Coll [74] ont montré que la dégradation du PMMA, synthétisé par voie radicalaire, se ferait en trois étapes:

La première serait initiée par la scission des liaisons anormales « tête-tête » (Figure V.2) dont l'énergie de dissociation doit être inferieure à celle d'une liaison C-C du squelette de la molécule à cause d'une gène stérique importante et de l'effet inductif des groupements esters concernés.



Fig.V.2 Dégradation thermique par les liaisons anormales tête-tête

 La deuxième correspondrait à la scission des doubles liaisons en fin de chaîne (résultant des terminaisons de dismutation), mettant en jeu une coupure homolytique en β du groupement vinylique (Figure V.3)



Fig. V.3 Coupure homolytique des liaisons anormales vinyliques

• La dernière étape serait initiée par une scission aléatoire de la chaîne polymère.

### V.5. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons élaboré un modèle de schéma cinétique pour expliquer le processus de dégradation de la surface de PMMA soumis à l'action des décharges électriques.

Bien que la surface de l'isolant soit propre au départ, les décharges peuvent transformer ses propriétés physico-chimiques et la rendre encore plus vulnérable à l'action de ces décharges à cause de la formation de produits de décomposition.

# **Conclusion générale**

### **Conclusion générale**

Dans ce travail, nous nous sommes intéressés à l'interaction de la décharge électrique dans la phase de préclaquage, avec une interface air/solide isolant. Nous avons d'une part, étudié les caractéristiques des décharges de surface et d'autre part, analysé avec les différentes techniques physico-chimiques les dégradations subies par le solide isolant sous l'action de ces décharges.

Nous avons étudié le courant associé aux décharges couronne, car il constitue le facteur par lequel ces décharges exercent une action de dégradation sur le solide isolant.

Nous avons montré que le courant maximum et la charge associée à la décharge augmentent avec la tension appliquée, la diminution de l'épaisseur de l'isolant et l'inclusion d'une couche d'air en série avec le solide isolant. Il diminue avec l'augmentation de l'épaisseur de ce dernier. Le courant maximum de décharge est plus grand en polarité positive qu'en polarité négative.

La permittivité du solide isolant et son facteur de pertes diélectriques diminuent avec l'augmentation de la fréquence.

Nous avons analysé la dégradation de la surface du polymère en utilisant les analyses physico-chimiques. La décharge agit sur le solide isolant en transformant ses propriétés. Ce qui se traduit par une dégradation superficielle. Nous avons vu que le système d'électrodes influe sur l'apparition des arborescences. La longueur finale des arborescences augmente avec l'augmentation de la durée de temps de vieillissement.

Nous avons établit un modèle de schéma cinétique pour expliquer comment les particules très énergétiques et les rayonnements produits par les décharges agissent sur les chaines moléculaires de la surface du solide. Des ruptures de liaisons chimiques se produisent et de nouveaux groupements fonctionnels apparaissent.

Dans le cadre de ce travail, des analyses de caractérisation physico-chimiques de la décharge électrique ont été faites, toutefois il apparaît nécessaire d'approfondir cette étude à l'aide d'analyses complémentaires plus poussées, comme par exemple analyse de l'hydrophobicité-mesure de l'angle de contact. Augmentation du temps de la durée de vieillissement. Approfondir la partie modélisation de la dégradation superficielle du matériau.

### **Communications et publications**

- **1.** Communications nationales
  - N. KIRECHE, E. BELHITECHE, F. ZEBOUDJ, M.A. HANDALA, « Caractérisation physico-chimique de styrène acrylonitrile (SAN) soumis à une décharge corona », IV<sup>éme</sup> Séminaire National sur les Matériaux, Procédés et Environnement, FSI- Boumerdès, 14-15 Mai 2012.
  - E. BELHITECHE, N. KIRECHE, F. ZEBOUDJ, H. GOUDJIL, M.A. HANDALA
    **« Effets du vieillissement électrique sur les propriétés diélectriques de solides isolants »**, 4<sup>émé</sup> Séminaire National sur les Matériaux et leurs Applications, USTHB, Alger, 22-24, Mai 2012.

# 2. Communications internationales

 M. A. HANDALA, N. KIRECHE, S. RONDOT, E. BELHITECHE « Etude de la dégradation du PMMA soumis à une décharge couronne », Third International Meeting on Dielectric Materials, IMDM'3, December 14-18, 2011, Monastir, Tunisia.

- M. A. HANDALA, E. BELHITECHE, N. KIRECHE « Influence des Caractéristiques de l'Interface Air-Solide sur les Impulsions de Courant et la Charge Associée » 8ème conférence de la Société Française d'Electrostatique, 3-5 juillet 2012, Cherbourg-Octeville, France

# **Références bibliographiques**

#### **Références bibliographiques**

- [1] R.S. Nema and F. Zahra « Study of corona Pulses in Air-Solid Interface » I.EEE Conference Record of International Symposium on Electrical Insulation, pp.407-410, Virginia, USA, 1998.
- [2] C.Y.Kim, J. Evans and D.A.I. Goring, « Corona-Induced Autohesion of Polyethylene », J. Appl. Polym. Sci. N°15, pp.1365-1375, 1971
- [3] S. Vacquié, "L'arc Électrique", CNRS Éditions et Eyrolles, France, 2000.
- [4] E. M. Van Veldhuizen and W. R. Rutgers, "Corona Discharges: Fundamentals and diagnostics", Faculty of Applied Physics, Private Communication, Technische Universiteit Eindhoven.
- [5] S. Y. Li, K. D. Srivastava and G. D. Theophilus, "Nanosecond StreakPhotography of Discharges on Spacer Surface in Gases", IEEE Transactions on ElectricalInsulations Magazine, Vol. 2,N°1, pp. 114- 120, 1995.
- [6] G. Le Roy, C. Gary, B. Hutzler, J. Lalot and C. Dubanton, "Les propriétés diélectriques de l'air et les très hautes tensions", Editions Eyrolles, Paris, 1984.
- [7] J.S. Townsend, "Electricity in gases" Oxford University Press, 1914.
- [8] Y.P. Raizer, "Gas discharge physics", ed. Springer-Verlag, 1991
- [9] Y.Miyoski, T. Hosokawa and O. Sakai, « Point-to-plan discharge phenomena in air in negative polarity », Nagoya institute of Technology, Bulletin, 1964.
- [10] A. Labergue, "Etude de décharges électriques dans l'air pour le développement d'actionneurs plasmas Application au contrôle de décollements " Thèse de doctorat de l'université de Poitiers, 2005.
- [11] M. Goldman., R.S. Sigmond, "Corona insulation", *IEEE Trans. Elec. Ins.*, EI. 12/2, pp. 90-105, 1982
- [12] D. Djemai, "Etude de la propagation des streamers à l'interface liquide/solide sous tension alternative 50 Hz," Ecole Nationnale Polytechnique d'Alger, 1991.
- [13] Lichtenberg G.C.: Novi Comm. Soc. Reg. Sci.Gott. Vol. 8. p. 168, 1977.
- [14] P. O. Pedersen, " Danske Vidensk Selkab," vol. Part I (1919), Part II (1922), Part III (1929).
- [15] F. H. Merrill and A. v. Hippel, "The atomphysical interpretation of Lichtenberg figures and their application to the study of gasdischarge phenomena," J. of Phys. D: Appl. Phys., Vol. 10, p. 873, 1939.

- [16] Y. Kashiwagi and H. Itoh, "Synchronization of positive surface streamers triggered by vacuum ultraviolet in atmosphere," J. Phys. D: Appl. Phys., vol. 39, pp. 113–118, 2006.
- [17] A. T. Morris, "Heat developed" and powder", Lichtenberg figures and the ionization of dielectric surfaces produced by electrical impulses ", British Journal of Applied Physics, vol. 2, pp. 98-109, 1951.
- [18] M. L. Coulibaly «Caractéristiques des décharges électriques se propageant aux interfaces solide / gaz -relation entre matériaux et dimension fractale » Thèse de Doctorat, école centrale de Lyon, 2009.
- [19] G. M. Sommerman, C. J. Bute and E. L. C. Larson, "impulse ionization in liquid dielectrics," AIEE Trans., Vol. 73, pp. 147-59, 1954.
- [20] Y. Nakao, M. Naruse, Y. Suzuki, H. Itoh, Y. Sakai, and H. Tagashira, "Influence of insulating barrier on the creepage discharge intransformer oil," *IEEE Transaction on Dielectrics and Electrical insulation*, vol. 4, pp. 775-779, 1997.
- [21] A. Beroual and R. Tobazeon, "Prebreakdown phenomena in liquid and solid cyclohexane with pointplane electrodes subjected to voltage steps," J. Phys. D: Appl. Phys., vol. 22, pp. 1568-1569, 1989
- [22] R. Hanaoka, T. Kohrin, Y. Genba, R. Ishibashi, and T. Miyamoto, "Impulse Creeping Discharge along the Surface of Polyethylene Wire immersed in Transformer Oil," presented at IEEE Proc. of Electrical Electronics Insulation Conf.(EIC).and Electrical Manufacturing & Coil Winding Conference, 1995.
- [23] Y. Nakao, N. Masashi, T. Sakai, H. Itoh, Y. S, Y. Sakai, and H. Tagashira,"Propagation Characteristics of Impulse Creepage Discharge in a Parallel-Plane Gap with a Protruding Point in Transformer Oil," Electrical Engineering in Japan, vol.124, 1998.
- [24] S. S. Hakim and J. B. Higham, "Phenomenon in n-hexane prior to its electric breakdown," Nature, vol. 189, pp. 966, 1961.
- [25] B. Farazmand, "Study of electric breakdown of liquid dielectrics using schlieren optical techniques," British Journal of Applied Physics, vol. 12, pp.1961
- [26] L. Niemeyer, L. Pietronero, and H. J. Wiesmann, "Fractal dimension of dielectric breakdown", Phys. Rev. Lett., Vol. 33, pp. 1033-1036, 1984.
- [27] R. Hebner, E. F. Kelley, E. O. Forster, and G. J. FitzPatrick, "Observation of prebreakdown and breakdown phenomena in liquid hydrocarbons," IEEE Transaction on Electrical Insulation, vol.20, pp.281-292, 1985.
- [28] Y. Nakao, K. Wakimoto, K. Miyagi, H. Itoh, Y. Sakai, and H. Tagashira,"Propagation Characteristics of Impulse Creepage Discharge in Perfluorocarbon Liquid," *Electrical Engineering in Japan*, vol. 131, 2000.

- [29] Y. Murooka, T. Kakada and K. Hidaka, "Nanosecond Surface Discharge and Charge Density Evaluation Part I: Review and Experiments" IEEE Electr. Insul. Magazine, Vol 17, N°2, pp.6-16, 2001.
- [30] L. Kebbabi « Caractérisation des décharges glissantes se propageant aux interfaces liquide/solide sous différentes formes de tension ». Thèse de Doctorat, école centrale de Lyon, 2006.
- [31] K. Khodja, A. Belasri, " Etude d'une DBD pour lampe à excimères dans un gaz de xenon", 7<sup>ème</sup> CNHT 2009. Sidi Bel- Abbès, pp 12-16, 19-21 Avril 2009.
- [32] Jianjun J. Shi, Dawei W. Liu, and Michael G. Kong, "Effects of dielectric Barriers in Radio-Frequency Atmospheric Glow Discharges", IEEE transactions On Electrical insulation.Vol.35, N°2, pp137-142, April 2007.
- [33] J.R. Roth, "Electrohydrodynamically induced airflow in a one atmosphere uniform glow discharge surface plasma", 25th IEEE International conference on plasma science, Raleigh, North Carolina, 1998.
- [34] A. Beroual and A. Boubakeur, "Influence of barriers on the lightning and switching impulse strength of mean air gaps in point/plane arrangements" IEEE Trans. Electr. Insul., Vol. 26, N°6, pp. 1130-1139, December 1991.
- [35] M. A. Handala, O. Lamrous, « Etude de courant de préclaquage d'une interface isolante solide/air », 7<sup>ème</sup> CNHT' 2009. Sidi Bel- Abbès, p 40, 19-21 Avril 2009.
- [36] U. Kogelschatz, E. Killer, B. Eliasson. « Decomposition of Hydrogen Sulfide in a Dielectric-Barrier Discharge ». American Physical Society, Gaseous Electronics Conference October 5-8, Norfolk, VA, 1999.
- [37] T. Ikematsu, N. Hayashi, S. Ihara, S. Satoh, C. Yamabe. « Advanced oxidation processes (AOPs) assisted by excimer lamp ». Vacuum 73,p 579–582,2004.
- [38] F. Massines, G. Gouda, N. Gherardi, M. Duran, E. Croquesel. « The Role of Dielectric Barrier Discharge Atmosphere and Physics on Polypropylene Surface Treatment ». Plasmas and Polymers, Vol. 6, Nos. 1/2, June 2001.
- [39] J.Y. Zhang, I.W. Boyd. « Lifetime investigation of excimer UV sources ». Applied Surface Science 168 p 296-299. 2000.
- [40] T. Shiga, S. Mikoshiba, S. Shinada. « Mercury-Free, High-Luminance and High-Efficacy Flat Discharge Lamp for LCD Backlighting ». Electronics and Communications in Japan, Part 2, Vol. 84, No. 8, 2001.
- [41] N.N. Guivan, J. Janca, A. Brablec, P. Stahel, P. Slavicek, L.L. Shimon. « Planar UV excilamp excited by a surface barrier discharge ». J. Phys. D: Appl. Phys. 38, pp 3188-3193, 2005.
- [42] J. Lewis, T.S. Sudarshan, J.E. Thompson, D. Lee and R.A. Dougal, « Pre-breakdown and Breakdown Phenomena of Dielectric Surface in Vacum and Nitrogen Gas Stressed
by 60 Hz Voltage » IEEE Conf. Record 6 Interfacial Phenomena in Practical Systems-Gaithburg, MD, USA, 19-20 September 1988.

- [43] Y. Yamano, Y. Takahashi and S. Kobayashi, "Improving Insulator Reliability with Insulating Barriers", IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol. 25, N° 6, pp. 1174-1179, 1990.
- [44] M. A. Handala and M. Moudoud, « Prebreakdown current in an air gap with dielectric barrier stressed by 50 Hz voltage », Record of the Fifth International Middle East Power Conference MEPCON'97, Alexandria, Egypt, Jan 4-6, pp. 675-678, 1997.
- [45] C. Konig,I. Quint, P. Rosch and B. Bayer, « Surface Discharges on Contaminated Epoxy Insulators », IEEE Trans. Electr. Insul, Vol.24, N°2, pp.229-237, 1989.
- [46] E. Nasser, "Development of Spark in Air from a Negative Point", J. Appl. Phys., Vol. 42, pp.2839-2847, 1971.
- [47] M. Gamez-Garcia, R. Bartnikas and M.R. Wertheimer, "Correlation of Surface Degradation and Charge Trapping in XLPE Subjected to Partial Discharges", IEEE Conference Record of the International Symposium on Electrical Insulation, pp.287-291, Boston, 1988.
- [48] Y. Takahashi, H. Fujii, S. Wakabayashi, T. Hirano and S. Kobayashi, "Discharges due to Separation of Corona-charged Insulating Sheet from a Grounded Metal Cylinder", IEEE Trans. Insul., Vol.24, N°4, pp. 573-580, 1989.
- [49] H. Okubo, M. Kanegami, M. Hikita and Y. Kito, "Creepage Discharge Propagation in Air and SF6 Influenced by Surface Charge on Solid Dielectrics", IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul., Vol.1, pp. 294-304, 1994.
- [50] Y.L. Sam, P.L. Lewin, A.E. Davies, J.S. Wilkinson, S.J. Sutton and S.G. Swingler, "Dynamic AC Surface Discharge Characteristic of PMMA and LDPE", Proceedings of the 2001 IEEE 7th International Conf. Solid Dielectr., pp. 159-162, June 25-29, 2001
- [51] G. Zhang, W. Zhao, Y. Sun and Z. Yan, "Surface discharge phenomena of silicon in atmospheric air" Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, 2003.
- [52] M.A. Handala and O. Lamrous, "Surface degradation of styrene acrylonitrile exposed to corona discharge", European Transactions on Electrical Power, pp. 494-505, 2008.
- [53] B. Torbiero, " Développement de microcapteurs électrochimiques pour l'analyse en phase liquide ", Thèse de Doctorat de l'Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse, 2006.
- [54] A. Kahlouche, "Contribution à la modélisation des mécanismes de transport de charges électriques dans les polyéthylènes" Thèse de Magister, Université de Constantine 2000.
- [55] E. Duguet, J-L. Pariente, P. Conort, " Chapitre II : Aspects physico-chimiques des biomatériaux utilisés en Urologie " Progrès en Urologie, n°15, p. 865-886, 2005.

- [56] G. Jarousse, "Adhésion des polymères semi-cristallins entre leur température de transition vitreuse et leur température de fusion", Thèse de doctorat de l'université Paris VI, 2004.
- [57] J. C. Dubois, » Propriétés diélectriques des plastiques » Techniques de l'ingénieur, Traité plastiques et composites, AM3140, 2001.
- [58] R. Hackam, "Outdoor HV Composite Polymer Insulators", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 6, N°5, pp. 557-585, 1999.
- [59] M. Moudoud, « Etude de la conduction électrique dans les polymères isolants », Thèse de Doctorat, université Mouloud Mammeri, Tizi-Ouzou, 2010.
- [60] A. Anton "Matériaux isolants solides caractéristiques électriques-" Techniques de l'ingénieur D 2 315, 2006.
- [61] H. Paqueton et J. Ruste "Microscopie électronique à balayage- Principe et équipement Techniques de l'ingénieur P865v2, 2006.
- [62] M. A. Handala, N. Kireche, S. Rondot, E.H. Belhiteche, « Etude de la dégradation du PMMA soumis à une décharge couronne », Third International Meeting on Dielectric Materials, IMDM, pp 52-57, Monastir, Tunisie 2011.
- [63] J.W. Chang and R.S. Gorur, "Surface Recovery of Silicone Rubber Used for HV Outdoor Insulation", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul. Vol.1, N°6, pp.1039-1046, 1994.
- [64] R.S. Grur, G.G. Karady, A. Jagota, M. Shah and A.M. Yates, "Aging in Silicone Rubber Used for Outdoor Insulation", IEEE Trans. Power Delivery, Vol.7, N°2, pp.525-538, 1992.
- [65] Z. Fang, X. Quiu, Y. Qiu and E. Kuffel, "Dielectric Barrier Discharge in Atmospheric Air for Glass-Surface Treatement to Enhance Hydrophobicity", IEEE Trans. On Plasma Science, Vol 34, N°, pp.1216-1222, 2006.
- [66] J.E. Andrew, P.E. Dyer, D. Foster, P.H. Key, "Direct etching of polymeric materials using an xenon monochloride laser", Appl. Phys. Lett. 43, pp.717-719, 1983.
- [67] H.H.G. Jellinek, R.J. Srinivarsan, "Theory of etching of polymers by far-ultraviolet high intensity pulsed laser long term irradiation", J. Phys. Chem. 88.pp3048-3051, 1984.
- [68] J.L.B. Bolland et G. Gee, "Kinetic Studies in the Chemistry of Rubber ABD Related Materials II. The kinetics of oxidation of unconjugated olefins", Trans. Faraday Soc, Vol.42, pp.236-243, 1946.
- [69] B. Marungsri, H. Shinokubo and R. Matsuoka, "Effect of Specimen Configuration on Deterioration of Silicone Rubber for Polymer Insulators in Salt Fog Ageing Test", IEEE Trans. Electr. Insul., Vol. 13, N°1, 129-138, 2006.

- [70] T.G. Gustavsson, S.M. Gubanski, H. Hillborg, S. Karisson and U.W. Gedde, "Aging of Silicone Rubber under AC or DC Voltages in a Coastal Environment", IEEE Trans. Electr. Insul., Vol. 8, N°6, 1029-1039, 2001.
- <sup>[71]</sup> C.G. Garton, "The energy of discharges and their interaction with solid dielectrics", Paper 45 in Gas Discharges and the Supply Industry, Butterworths, 1962.
- [72] J.H. Mason, "Discharges", IEEE Trans. Electr. Insul, Vol 3, N°4, pp. 211-239, 1978.
- [73] Y.L. Sam, P.L. Lewin, A.E. Dvies, J.S. Wilkinson, S.J. Sutton and S.G. Swingler,
  "Dynamic AC Surface Discharge Characteristic of PMMA and LDPE", Proceedings of the 2001 IEEE 7<sup>th</sup> Internationl Conf. Solid Dielectr, pp. 159-162, June 25-29, 2001.
- [74] T. Kashiwagi, A. Inaba, J.E. Brown, K. Hatada, T. Kitayama, E. Masude, Macromolecules, 19: 2160-2168,1986

## Résumé :

Ce travail porte sur l'étude de la dégradation d'un solide isolant soumis à une décharge électrique de surface. Les caractéristiques physico-chimiques de la décharge sont analysées par un microscope électronique à balayage (MEB), à la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF) et à la dispersion d'énergie par rayon X (EDS). L'influence de l'humidité sur la dégradation du poly méthacrylate de méthyle (PMMA) est mise en évidence. La morphologie, la longueur finale des décharges en fonction du temps de vieillissement ainsi que la variation des courants maximum de décharges et la charge associée en fonction de la tension appliquée, de l'épaisseur de l'isolant et l'intervalle d'air sont également étudiés. Nous avons montré que le courant maximum et la charge associée à la décharge augmentent avec la tension appliquée, la diminution de l'épaisseur de l'isolant et l'inclusion d'une couche d'air en série avec le solide isolant. Il diminue avec l'augmentation de l'épaisseur de ce dernier. Le courant maximum de décharge est plus grand en polarité positive qu'en polarité négative. Nous avons établit un modèle de schéma cinétique pour expliquer comment les particules très énergétiques et les rayonnements produits par les décharges agissent sur les chaines moléculaires de la surface du solide. Des ruptures de liaisons chimiques se produisent et de nouveaux groupements fonctionnels apparaissent.

Mots-clés : analyse IRTF, Arborescences, Courants de décharge, Dégradation, MEB, PMMA.