

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

UNIVERSITE MOULOUD MAMMERRI DE TIZI-OUZOU



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

**Mémoire de Fin d'Etudes
De MASTER ACADEMIQUE**
Domaine : **Sciences et Technologies**
Filière : **Génie Electrique**
Spécialité : **Réseaux électriques**

Présenté par
Lamia CHELLI

Thème
**Effet du champ électrique sur les
propriétés du polyéthylène réticulé
chimiquement**

Mémoire soutenu publiquement le 20/07/ 2016 devant le jury composé de :

M Djaffar BOUGUEDAD
MCA, UMMTO, Président

M Mustapha MOUDOUD
MCA, UMMTO, Encadreur

M Abdallah HEDIR
Doctorant, UMMTO, Co-Encadreur

M Namani Farid
MAA, UMMTO, Examineur

M Elhadi BELHITECHE
MAA, Université de M'sila, Examineur

Remerciements

*Ce mémoire de Master a été proposé et dirigé par Monsieur, **Mr. Mustapha MOUDOUD** Maître Conférence-A, à l'université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou (UMMTO). Ce moment est pour moi l'occasion de vous témoigner mon profond respect et mon immense reconnaissance. Comme je tiens à remercier chaleureusement **Mr. Hedir** mon Co-encadreur pour son implication direct dans la réalisation de mes travaux. Ses conseils et ses orientations ont été précieux.*

*Je remercie vivement Monsieur **Djaffar BOUGUEDAD**, Maître Conférence-A à l'UMMTO pour l'honneur qu'il nous fait en acceptant d'être président du jury.*

*Je tiens à exprimer mes vifs remerciements à Monsieur **NAMANI Farid**, maître assistant-A à l'UMMTO pour avoir accepté de juger ce travail.*

*Mes remerciements vont également à Monsieur **BELHITCHE El Hadi**, maître assistant-A à l'Université de M'sila qui fait partie du jury.*

Que l'ensemble du personnel du département de d'électrotechnique et ses étudiants ainsi que ceux qui ont contribué de près ou de loin à la réalisation de ce mémoire trouvent ici ma profonde gratitude.

Je dédie ce modeste travail...

*A la prunelle de mes yeux, **ma mère**. La femme la plus courageuse et douce au monde. A mon très cher **papa**. Mon modèle, mon ami. Sans vos sacrifices et efforts, je ne serai guère là à présenter ce modeste travail et écrire ces quelques lignes pour témoigner mon profond respect et l'amour que je porte pour vous.... J'espère que vous serez toujours fière de moi comme moi je le suis.*

A mes grands frères

A tous mes amis (es) et camarades...

Sommaire

Sommaire

<i>Introduction générale</i>	01
---	----

Chapitre I : Généralités sur les polymères

I-1 Introduction	02
I-2 Définition d'un polymère.....	02
I-3 Structure d'un polymère	03
I-3-1 Structure chimique	03
I-3-2 Structure physique	04
I-4 Polymérisation.....	04
I-5 Classification des polymères.....	05
I-6 Polarisation électrique et phénomène de relaxation diélectrique.....	07
I-6-1 Bases de physique pour la polarisation diélectrique	07
I-6-1-1 Principe de polarisation.....	07
• Echelle macroscopique.....	07
• Echelle microscopique.....	08
I-6-1-2 Les différents processus de polarisation.....	09
a) Polarisation électronique.....	09
b) Polarisation ionique.....	09
c) Polarisation dipolaire ou d'orientation.....	10
d) Polarisation inter-faciale.....	10
I-6-2 Relaxation dipolaire dans les polymères.....	11
I-6-2-1 Relaxation de Debye et de conduction.....	11
I-6-2-2 Distribution des temps de relaxation et modèles empiriques.....	12
I-7 Conduction électrique dans les polymères.....	13
I-7-1 Conduction ionique.....	13
I-7-2 Conduction électronique.....	14
I-7-3 Mécanisme contrôlé par l'interface.....	14
I-8 Polyéthylène.....	15
I-9 Polyéthylène réticulé chimiquement.....	16
I-9-1 Type de réticulation.....	16

Conclusion.....	17
-----------------	----

Chapitre II : Vieillissement électrique des polymères

II-1 Introduction.....	18
II.2 Vieillissement électrique.....	18
II.2.1 Scénario standards du vieillissement.....	18
II.2.2 Facteurs essentiels du vieillissement électrique des polymères.....	19
II.2.2.1 Arborescence électrique.....	19
II.2.2.2 Charges d'espace.....	20
II.2.2.3 Décharges partielles et cavités.....	23
II.2.2.4 Décharges de surface.....	24
II.3 Rupture diélectrique-Mécanisme de claquage.....	24
II.3.1 Claquage thermique.....	24
II.3.2 Claquage électromécanique.....	25
II.3.3 Claquage électrique.....	26
II.4 Lois de vieillissement électrique et modèles de durée de vie.....	26
❖ Modèle de puissance inverse.....	26
❖ Modèle exponentiel.....	28
❖ Modèle de Fallou.....	29
❖ Modèle de Ramu.....	29
❖ Modèle de Simoni.....	30
❖ Modèle de Montanari.....	31
❖ Modèle de Crine.....	32
II.5 Conclusion	33

Chapitre III : Techniques expérimentales

III.1 Introduction	34
III.2 Vieillissement électrique.....	34
III.3 Caractéristiques du matériau utilisé (PRC).....	35
III.4 Usinage et conditionnement des éprouvettes.....	36

III.5 Méthode expérimentale.....	37
III.5.1 Propriétés électrique.....	37
III.5.1.1 Caractérisation diélectrique.....	37
• Permittivité relative.....	37
• Facteur de dissipation.....	38
• Indice de pertes diélectriques ($\text{tg}\delta$).....	38
• Résistivité en AC.....	38
III.5.2 Propriétés mécaniques.....	39
• Mesure de la résistance à la traction.....	39
• Mesure de l'allongement à la rupture.....	39
• Dureté de surface.....	40
III.5.3 Propriétés physico-chimiques.....	41
• Microscopie Optique.....	41
• Microscopie Electronique à Balayage.....	41
III.6 Conclusion.....	42

Chapitre IV : Résultats et discussions

IV.1 Introduction.....	43
IV.2 Caractérisation diélectrique.....	43
VI.2.1 Permittivité relative.....	43
VI.2.2 Facteur de dissipation ($\text{tg}\delta$).....	44
VI.2.3 Indice de pertes diélectriques ($\text{tg}\delta$).....	45
VI.2.4 Résistivité volumique en AC.....	47
IV.3 Caractérisation mécaniques.....	48
IV.3.1 Allongement à la rupture.....	48
IV.3.2 Résistance à la traction.....	49
IV.3.3 Dureté de surface.....	50
IV.4 Caractérisation physico-chimiques.....	50
IV.4.1 Microscopie Optique.....	50
I.V.4.2 Microscopie Electronique à Balayage (MEB)	51
IV.5 Conclusion.....	52

Conclusion générale.....	53
Références bibliographiques	

Introduction générale

Introduction générale

La découverte des polymères et leur constante évolution ont permis de généraliser leur utilisation dans plusieurs domaines tels que dans les lignes de transport d'énergie électrique, condensateurs, alternateurs, câbles et moteurs électriques.

Les polymères se caractérisent par leurs excellentes propriétés isolantes, leur grande résistance aux attaques chimiques et leurs bonnes caractéristiques mécaniques. [1]

Depuis 1940, le polyéthylène (PE) est le plus utilisé dans la fabrication de câbles de moyenne et haute tension en raison de son faible coût, sa très bonne rigidité diélectrique et ses pertes diélectriques minimales. Cependant avec l'arrivée de la nouvelle technologie des câbles 500 kV, le comportement thermique du PE à haute température et son caractère thermoplastique limitent son utilisation. C'est dans ce cadre que le polyéthylène réticulé chimiquement est devenu un produit de remplacement. Il présente des propriétés mécaniques et électriques plus performantes. Ces propriétés dépendent de la morphologie, de l'oxydation et des contaminations ou impuretés du polymère. [2]

Ces facteurs de vieillissement peuvent conjointement contribuer, en présence des contraintes électriques, à la dégradation des propriétés principales du matériau en fonction du temps qui peut, dans certains cas, devenir forte et conduire à la détérioration de l'isolant par rupture diélectrique ou thermique.

Notre travail effectué consiste à caractériser les propriétés diélectriques, mécaniques et physico-chimiques du polyéthylène réticulé chimiquement (PRC) soumis à un vieillissement électrique.

Notre mémoire est présentée sous forme de quatre chapitres. Le 1^{er} chapitre est consacré aux généralités sur les polymères et à la présentation du matériau utilisé dans notre travail à savoir le PRC.

Le 2^{ème} chapitre est axé sur les facteurs essentiels du vieillissement électrique des polymères et les différents mécanismes de leur claquage.

Pour le 3^{ème} chapitre nous expliquons les techniques expérimentales utilisées dans la caractérisation du PRC soumis à un vieillissement électrique.

Enfin, le 4^{ème} chapitre est attribué aux résultats expérimentaux et aux discussions.

Nous finissons notre recueil par une conclusion générale qui résume les points forts de notre étude ainsi que les perspectives ouvertes par ce travail.

Chapitre I

Généralités sur les polymères

I.1. Introduction

La technique d'isolation des câbles de puissance à base de papier imprégné d'huile sous pression, a permis à partir des années soixante-dix de transporter de l'électricité sous haute tension. Cependant des inconvénients propres au matériel employé, comme le coût d'entretien et la surveillance des lignes, a toujours entravé son utilisation à grande échelle.

Les progrès dans la fabrication des polymères, pouvant supporter des champs électriques intenses associés à une méthode d'extrusion des câbles par une combinaison de polymère et d'écran semi-conducteur, a permis de remplacer définitivement le procédé à papier imprégné. [2]

Ces polymères sont largement utilisés pour leurs excellentes propriétés physico-chimiques comme l'hydrophobicité de leur surface, leur solidité mécanique etc.... [3]

L'objectif principal de ce chapitre est de dresser un état de l'art sur les isolants polymériques et donner ainsi un aperçu sur les principaux polymères, leur classification, leur structure.

I.2. Définition d'un polymère

Le mot polymère vient du grec « polus » plusieurs, et « meros » partie. Un polymère est une macromolécule, organique ou inorganique, constituée de l'enchaînement répété d'un même motif, le monomère (du grec monos: un seul ou une seule, et meros : partie), reliés les uns aux autres par des liaisons covalentes. Ces motifs peuvent être arrangés suivant un enchaînement unidimensionnel constituant des chaînes linéaires (polymères linéaires) ou reliés entre eux pour former un réseau tridimensionnel (polymères réticulés). [4] Les macromolécules sont connectées les unes aux autres par des liaisons faibles de type Van der Waal. [5]

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 un oligomère. Ce degré de polymérisation peut atteindre plusieurs centaines de milliers. La dimension d'un monomère est de l'ordre de 0.2 à 1 nm alors que celle du polymère peut atteindre quelques milliers de nm. [1]

I.3. Structure d'un polymère

Les matériaux polymères sont généralement utilisés pour leurs propriétés mécaniques particulières et leur aptitude à être mis en œuvre, ces qualités sont étroitement liées à leur structure. La structure et les propriétés finales du matériau dépendent de la nature des atomes constitutifs, de l'agencement des unités monomères et de l'organisation des chaînes dans l'espace. [5]

I.3.1. Structure chimique

Il s'agit de la description d'une macromolécule à partir d'atomes, notamment le type d'atomes et leur disposition le long de la chaîne polymère, la nature des groupements terminaux et des substituants, le type et la longueur des ramifications, la masse molaire et l'arrangement spatial. [6]

Réellement, une macromolécule est constituée d'une chaîne principale, appelée également squelette, sur laquelle des atomes d'une nature chimique différente ou des molécules peuvent se substituer, latéralement et de façon plus ou moins régulière, à certains atomes appartenant au monomère constitutif d'origine ; il s'agit de substituants. Les substituants présentent une structure différente de celle de la chaîne principale. Si la structure chimique des groupes d'atomes disposés latéralement sur le squelette est identique à la structure de la chaîne principale, on parle de ramifications ou de branches. Les substituants peuvent soit stabiliser, rigidifier ou au contraire affaiblir l'édifice macromoléculaire, mais aussi rendre la chaîne principale et l'ensemble des macromolécules plus mobiles et plus flexibles. [25]

Les atomes dans une macromolécule sont associés par des forces de cohésion de type chimique (covalente ou ionique) ou physique (liaisons secondaires). La réticulation macromoléculaire est la conséquence directe de l'association chimique entre les macromolécules. En plus des liaisons chimiques, il y a toujours des liaisons physiques de type de Van der Waals qui servent de maintien pour les chaînes macromoléculaires. Il est à noter que les forces de cohésion chimiques sont beaucoup plus élevées que les forces de cohésions physiques. La formation préférentielle d'une de ces configurations est liée à l'encombrement du monomère de départ, et/ou à l'ajout de réactifs qui permettent l'accrochage de chaînes latéralement au squelette de la macromolécule.

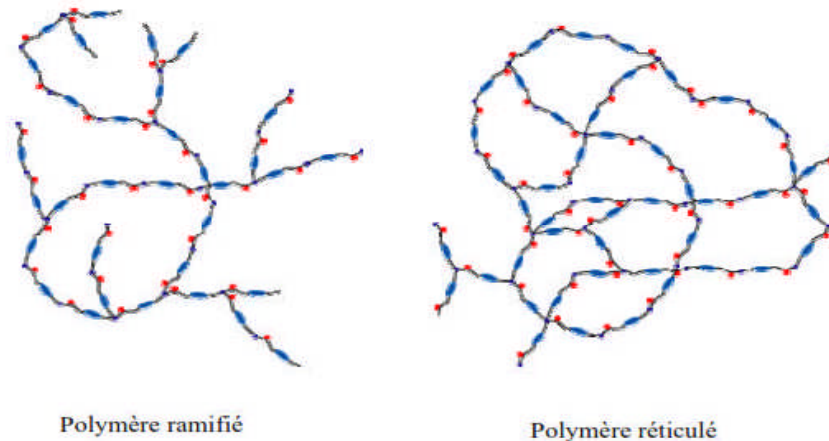


Figure I.1 : Représentation schématique de différents types de macromolécules [1]

I.3.2. Structure physique

La structure physique d'un polymère définit l'architecture ou l'arrangement spatial des atomes et des groupements d'atomes dans une macromolécule, mais aussi ceux des macromolécules les unes par rapport aux autres. Ces macromolécules peuvent s'arranger en se repliant ou par rotation libre autour des axes de liaison, afin d'adopter la conformation qui demande le moins d'énergie. [6] La structure des polymères oscille entre un état amorphe totalement désordonné et un état cristallin plutôt organisé. En général on a affaire à un mélange de deux phases, amorphe et cristalline, donnant une structure de type semi-cristallin, c'est le cas du polyéthylène, largement utilisé dans les applications industrielles pour ses bonnes propriétés diélectriques.

Le polyéthylène possède l'une des structures les plus simples de tous les polymères.

I.4. Polymérisation

La polymérisation est un processus de transformation d'un monomère, ou d'un mélange de monomères en polymère. Elle désigne une réaction chimique en fonction du temps et de la température conduisant la résine à se solidifier de manière irréversible. [8]

La synthèse d'un polymère peut se faire de différentes manières : polymérisation anionique, cathodique, par polycondensation ou polyaddition. Cependant, les polymères « purs » sont fragiles, et ils peuvent subir, sous l'action de diverses sources (chaleur, humidité, lumière...) des dégradations qui se traduisent par une modification de leur structure chimique, et entraînent une altération des propriétés physiques. [7] Lors de leur élaboration, les fabricants ajoutent donc diverses substances qui modifient et renforcent leurs propriétés

Les principales substances utilisées sont :

- Les antioxydants : ils permettent aux polymères de ne pas réagir en présence de l'oxygène de l'air et par conséquent retarder l'oxydation au cours de la transformation et de l'utilisation.
- Agents de réticulation : ils forment des ponts intermoléculaires en se liant aux chaînes du polymère. Ils permettent ainsi la formation d'un réseau macromoléculaire, qui confère au matériau une meilleure stabilité mécanique et thermique.
- Les plastifiants : ils détruisent partiellement les interactions entre chaînes responsables de la cohésion mécanique pour avoir un matériau souple et flexible.
- Autres additifs : d'autres additifs tels que les colorants, les agents énucléant, les antichocs etc... peuvent être ajoutés, en fonction des propriétés recherchées.

Tous ces additifs peuvent réagir avec d'autres molécules. Des traces de ces substances ou des produits de leurs dégradations se retrouvent alors dans la matrice du polymère solide. [1]

Les impuretés présentes dans la matrice du polymère solide entraînent un désordre purement chimique, car elles sont dues essentiellement à des résidus de synthèse. Ces impuretés jouent un rôle important dans le processus de vieillissement. [6] Nous évoquerons, dans la partie pratique, le rôle des impuretés dans le processus du vieillissement électrique des polymères.

I.5. Classification des polymères

Les polymères sont souvent classés suivant leurs propriétés thermomécaniques. On distingue : [1]

a. Les thermoplastiques : les polymères thermoplastiques sont des polymères linéaires sans pont d'une molécule à l'autre, et c'est pour cette raison qu'ils se ramollissent au chauffage et leur mise en œuvre est facile. Exemple : Le polyéthylène (PE).

b. Les thermodurcissables : Ils sont fabriqués en mélangeant deux constituants (une résine et un durcissant), qui réagissent et durcissent, tantôt à chaud, tantôt à température ambiante. Le polymère obtenu comprend de nombreuses liaisons covalentes de chaînes à chaînes. Sous l'action de la chaleur, la structure du polymère se ramollit mais ne fond pas. (Le polyester UP).

c. Les élastomères : Les élastomères sont des polymères linéaires avec juste quelques ponts (1 % monomères). Ces ponts fournissent au matériau une " mémoire" de sa forme initiale, qu'il retrouve après décharge (déformable d'une manière réversible).

d. Les polymères naturels : Les principaux polymères naturels utilisés sont :

- Le poly isoprène (caoutchouc)
- La cellulose et la lignine constituante principale du bois et de la paille
- Les protéines de la laine et la soie.

Ils peuvent aussi être classés par leurs structures.

On distingue :

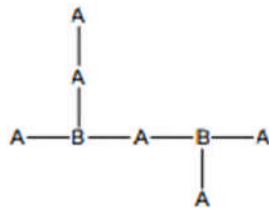
- **Les homopolymères** : formés à partir d'un unique monomère. Exemple PS
- **Les copolymères** : formés à partir de monomères différents. Exemple : PET

On distingue les polymères :

- **Linéaires** : A-A-A-A-A-A-A-A, représentés :



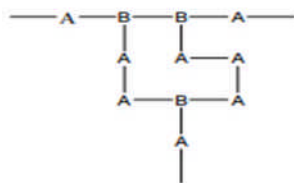
- **Ramifiés** :



représentés :



- **Réticulé** :



représentés :



I.6 Polarisation électrique et phénomène de relaxation diélectrique

I.6.1 Bases de physique pour la polarisation diélectrique

La polarisation électrique est souvent expliquée par la réorganisation de charges de façon à s'opposer à l'action d'un champ extérieur appliqué, cette propriété est caractéristique des matériaux diélectriques, ils se polarisent dès qu'un champ électrique leur est appliqué. Les charges présentes dans un diélectrique ne sont pas liées de façon absolument rigide les unes aux autres, de fait, sous l'effet d'un champ électrique le barycentre des charges positives et celui des charges négatives, initialement confondus, se séparent, formant ainsi un dipôle électrique [9,10].

Les travaux de G.C.Montanari et D.K.Das-Gupta [12], ont montré que la détermination de la charge d'espace ou de la distribution de la polarisation peut être utile dans l'étude de vieillissement des polymères.

I.6.1.1 Principe de la polarisation

- **Echelle macroscopique [2,37]**

Dans un vide contenant des charges libres, le champ électrique E et l'induction D sont liés par la relation (I.1) :

$$D = \varepsilon_0 E \quad (\text{I.1})$$

Où ε_0 est la permittivité du vide.

La relation qui régit un diélectrique introduit dans un volume d'espace, tiendra compte des charges dues au phénomène de polarisation et sera donnée par :

$$D = \varepsilon_0 E + P \quad (\text{I.2})$$

Dans un milieu linéaire homogène et isotrope, la polarisation et le champ électrique sont liés par la relation (I.3) :

$$P = \varepsilon_0 \chi E \quad (\text{I.3})$$

Où χ est la susceptibilité électrique statique.

En remplaçant l'expression (I.3) dans (I.2), on en déduit :

$$D = \varepsilon_0 (1 + \chi) E \quad (\text{I.4})$$

On pose :

$$P = \varepsilon_0(\varepsilon_r - 1)E \quad (\text{I.5})$$

L'expression de l'induction D en fonction du champ électrique E devient ainsi comme suit :

$$D = \varepsilon E \quad (\text{I.6})$$

Où ε_r est la permittivité relative et ε est l'absolue.

La polarisation peut s'écrire aussi en fonction des permittivités :

$$P = \varepsilon_0(\varepsilon_r - 1)E \quad (\text{I.7})$$

• Echelle microscopique [2]

Considérons le cas d'un polymère (diélectrique) dont les molécules ne peuvent pas être assimilées à des dipôles permanents. Si on le soumet à l'action d'un champ électrique, les centres des charges positives et négatives ne vont plus coïncider ; chaque atome ou molécule se déforme et peut être assimilé alors à un dipôle dont le moment a pour valeur :

$$\vec{p} = q\Delta\vec{l} \quad (\text{I.8})$$

Où $\Delta\vec{l}$ est le vecteur joignant les charges q et $(-q)$.

Dans un polymère polarisé, où se trouvent des moments dipolaires permanents, on peut penser directement à un champ local E_l , appelé aussi champ de Lorentz, ce même champ induit un moment dipolaire au niveau de chaque molécule (électrons, atomes, molécules non polaires) donné par :

$$\vec{p} = \alpha\vec{E}_l \quad (\text{I.9})$$

Où α est la polarisabilité de la molécule.

La polarisation globale \vec{p} est relié au nombre de molécules N par unité de volume possédant des moments dipolaires \vec{p} , soit :

$$\vec{p} = N\vec{p} = N\alpha\vec{E}_l \quad (\text{I.10})$$

Le champ local \vec{E}_l est la somme du champ \vec{E}_l appliqué par la source et le champ \vec{E}_d dû à la présence de dipôles dans tout le volume de diélectrique :

$$\vec{E}_l = \vec{E} + \vec{E}_d \quad (\text{I.11})$$

Le champ \vec{E}_l est donné aussi par :

$$\vec{E}_l = \vec{E} + \frac{\vec{P}}{3\epsilon_0} \quad (\text{I.12})$$

On reprend l'expression (I.7) et on la remplace dans la relation (I.12), on trouve :

$$\vec{E}_l = \frac{(\epsilon_r + 2)\vec{E}}{3} \quad (\text{I.13})$$

On établit facilement, en tenant compte de la relation (I.10), la relation de Clausius-Mossotti :

$$\frac{(\epsilon_r - 1)}{(\epsilon_r + 2)} = \frac{N\alpha}{3\epsilon_0} \quad (\text{I.14})$$

L'équation de Clausius-Mossotti, nous permet d'établir une relation entre une propriété microscopique qui est la polarisation et une grandeur macroscopique qui est la permittivité ou la constante diélectrique.

I.6.1.2 Les différents processus de polarisation

a) Polarisation électronique

Appelée aussi polarisation optique, elle se présente dans tous les matériaux diélectriques, ce type de polarisation s'établit en un temps très court et on peut l'observer dans des fréquences allant de 10^{13} jusqu'à 10^{15} Hz. La polarisation électronique se produit dès qu'un champ électrique est appliqué, engendrant un net déplacement du nuage électronique de chaque atome par rapport au noyau. [13]

b) Polarisation ionique

Cette polarisation, appelée aussi polarisation atomique se produit aux fréquences inférieures à 10^{13} Hz [19]. Lorsque différents atomes sont présents dans une molécule (cas des polymères), les électrons participant aux liaisons de covalence se déplacent préférentiellement vers l'atome le plus électronégatif créant ainsi, sous contrainte électrique extérieure, un moment de liaison. Si l'on superpose à un champ électrique, les atomes se déplacent les uns par rapport aux autres, donnant naissance à une polarisation ionique [2]. Les matériaux où se manifeste la polarisation atomique peuvent montrer une grande constante diélectrique (permittivité), parfois supérieure à 6000. [13]

c) Polarisation dipolaire ou d'orientation

Etudiée par Debye, la polarisation dipolaire est spécifique aux matériaux ayant des molécules qui présentent un moment dipolaire permanent [15]. Les moments sont omniprésents même si aucun champ électrique n'est appliqué et ne présentent pas d'orientation particulière, du fait de l'agitation thermique. Lorsque le diélectrique est soumis à champ électrique, les dipôles manifestent une tendance à s'orienter dans la direction de ce même champ, engendrant ainsi la polarisation d'orientation. Ce type de polarisation dépend fortement de la température, la polarisation totale où la polarisation dipolaire est dominante diminue avec l'augmentation de la température. [14]

d) Polarisation inter-faciale ou polarisation par charges d'espace (effet Maxwell-Wagner-Sillars)

Cette polarisation se manifeste dans les matériaux constitués d'un mélange de composés. Ces matériaux constituent souvent des conglomérats où les propriétés diélectriques diffèrent. La polarisation interfaciale (charge d'espace) apparaît quand les porteurs de charges migrants sont piégés aux interfaces suite à l'application d'un champ électrique, causant ainsi une locale accumulation de charges et une distorsion macroscopique du champ [13].

Les différentes polarisations en fonction de la fréquence du champ électrique appliqué, sont représentées sur la figure I.2 :

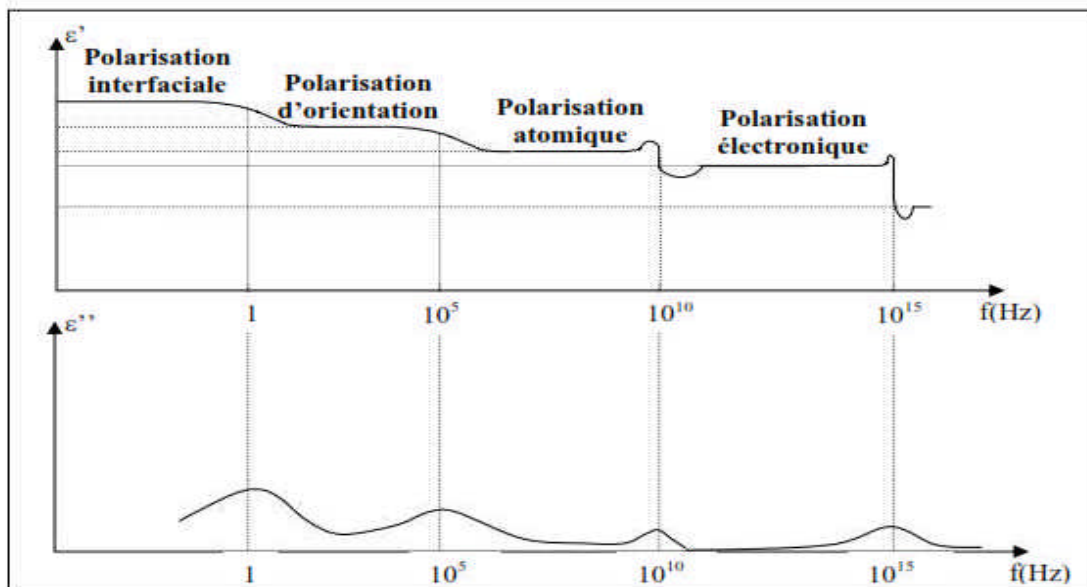


Figure I.2 : Différentes étapes de polarisation en fonction de la fréquence [2]

I.6.2 Relaxation dipolaire dans les polymères

La spectroscopie diélectrique est devenue une des importantes et effectives techniques pour étudier la dynamique des matières, elle permet d'analyser les structures et les comportements électriques des matériaux diélectriques, d'observer la relaxation de dipôles, de molécules, et le déplacement des charges dans les matériaux ainsi que de fournir des informations sur la structure du matériau. Les processus de relaxation sont complexes et la compréhension de l'origine physique des mécanismes de relaxation est indispensable [16]. La relaxation rétablit l'état original d'un système après une perturbation temporelle. Les exemples sont la relaxation d'un solide sur difformité mécanique, ou la randomisation d'un ensemble de dipôles électriques ou aimantés après avoir enlevé le champ appliqué [17]. La relaxation diélectrique détectée dans les matériaux diélectriques dépend de la localisation et de l'orientation de moments du dipôle dans les molécules ou dans les unités moléculaires [16].

I.6.2.1. Relaxation de Debye et de conduction

La relaxation dipolaire, établie par Debye, est le type de relaxation le plus simple, elle se manifeste dans les structures visqueuses sans force d'interaction entre les dipôles. Le modèle de Debye de la permittivité diélectrique complexe en fonction de la fréquence angulaire ω est défini par la relation suivante [18] :

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon'(\omega) - i\varepsilon''(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + i\omega\tau} \quad (\text{I.15})$$

$$\text{Avec : } \begin{cases} \varepsilon'(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + \omega^2\tau^2} \\ \varepsilon''(\omega) = (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \frac{\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \end{cases} \quad (\text{I.16})$$

Où ε_s et ε_∞ sont respectivement les permittivités statiques et à fréquence infinie et τ est le temps de relaxation unique de Debye. La Figure I.5, représente l'évolution des parties réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique complexe en fonction de la fréquence suivant la relation (I.15) du modèle de Debye.

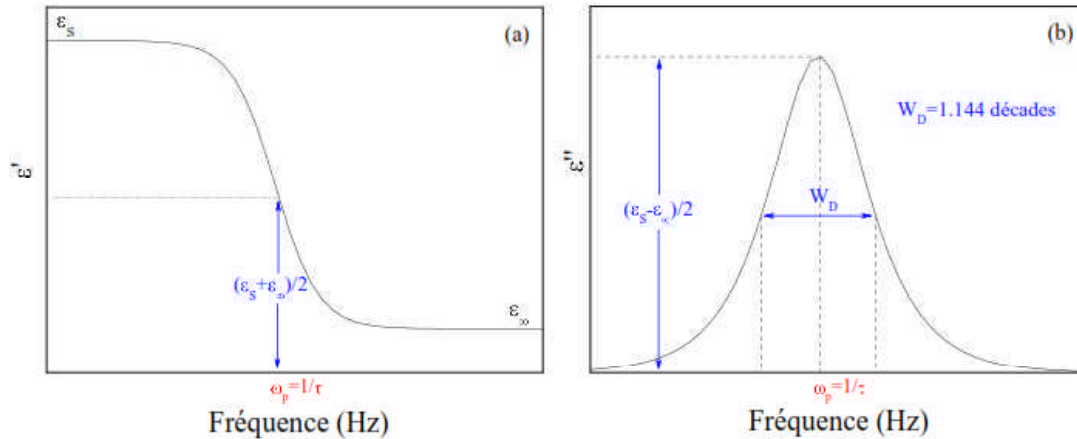


Figure I.3 : Evolution des parties réelles (a) et imaginaire (b) de la permittivité diélectrique complexe en fonction de la fréquence suivant le modèle de Debye [19].

La permittivité réelle $\varepsilon'(\omega)$ et imaginaire $\varepsilon''(\omega)$, donc le facteur de pertes diélectriques sont reliés par la transformé d'Hilbert souvent connu sous le nom de relations de Kramers-Kronig [20]. De plus, si l'on tient compte de la contribution de la conductivité σ_{DC} du milieu, qui intervient sur les pertes diélectriques aux basses fréquences, la relation qui donne la permittivité imaginaire devient :

$$\varepsilon''(\omega) = (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \frac{\omega\tau}{1 + i\omega^2\tau^2} + \frac{\sigma_{DC}}{\varepsilon_0\omega} \quad (\text{I.17})$$

I.6.2.2 Distribution des temps de relaxation et modèles empiriques

En général, la relaxation de Debye est observée seulement dans quelques solutions diluées ou matériaux ferroélectriques dont l'interaction entre dipôles dans le système condensé joue un rôle important. Les pics de pertes diélectriques observés dans les isolants solides sont généralement plus larges et asymétriques comparés à celui de Debye. Par conséquent, le temps de relaxation dipolaire n'est plus unique et devient défini par une fonction de distribution $G(t)$ autour d'une valeur moyenne τ . La nouvelle permittivité diélectrique complexe se définit alors par [28] :

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty + \int_0^\infty \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + i\omega\tau} G(\tau) d\tau \quad (\text{I.18})$$

Il existe plusieurs méthodes proposées pour obtenir la fonction de distribution $G(t)$ mais le problème n'est pas bien résolu. Pour cette raison, des formules empiriques basées sur une relaxation de type « non-Debye » ont été développées par Cole-Cole, Davidson, Havriliak et Negami, et ont pour forme générale [21, 22, 23] :

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_{\infty} + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}}{[1 + (i\omega\tau)^{\alpha}]^{\beta}} \quad (\text{I.19})$$

Où α et β sont les paramètres dépendant de la forme de la réponse qui décrivent respectivement le caractère symétrique et asymétrique de la fonction de distribution des temps de relaxation :

- Si $\alpha = \beta = 1$, on a la réponse de Debye.

- $\alpha = 1$, $0 < \beta < 1$ sont représentatifs de la réponse diélectrique dans les liquides et les solutions de polymères. Ce modèle a été proposé par Davidson et Cole. [22]

- Pour $0 < \alpha < 1$ et $\beta = 1$, on a la réponse de Cole–Cole pour les solides amorphes et certains polymères. [21]

- $0 < \alpha < 1$ et $0 < \beta < 1$ correspondent à la réponse de Havriliak-Negami. [23] Elle constitue en général la meilleure description pour représenter le comportement des polymères. Les paramètres de forme sont souvent notés α_{HN} (pour α) et β_{HN} (pour β).

Par ailleurs, aux fréquences les plus basses, la conductivité DC entraîne une forte augmentation des pertes bien visible dans la partie imaginaire de $\varepsilon(\omega)$. On rajoute donc le terme de conductivité à (I.19) ce qui donne :

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_{\infty} + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}}{[1 + (i\omega\tau)^{\alpha_{HN}}]^{\beta_{HN}}} + \frac{\sigma_{DC}}{i\varepsilon_0\omega} \quad (\text{I.20})$$

Le rapport de la partie imaginaire sur la partie réelle de la permittivité diélectrique complexe correspond au facteur de pertes diélectriques $\tan \delta$ qui définit la quantité d'énergie électrique dissipée dans l'isolant indépendamment de ses dimensions (épaisseur, section). Il s'exprime donc par :

$$\tan \delta = \frac{\varepsilon''(\omega)}{\varepsilon'(\omega)} \quad (\text{I.21})$$

I.7 Conduction électrique dans les polymères

I.7.1 Conduction ionique

A cause de leur diversité, il est difficile de citer les différents mécanismes de génération des ions à l'origine de la conduction électrique dans les polymères isolants. En effet, des ions, résidus chimiques de la mise en œuvre, existent dans le diélectrique. Les

réactions chimiques, comme par exemple, le soufre présent dans les antioxydants ou des ions organiques issus de l'oxydation du polymère peuvent être à l'origine de la génération des ions. D'autre part, l'humidité constitue un facteur crucial puisque la molécule d'eau influe dans le transport des charges électriques, en formant, par dissociation, l'ion OH⁻ [2]. D'autre part, l'application d'un champ électrique peut créer des ions par dissociation



I.7.2 Conduction électronique

La dissociation radiative et l'agitation thermique sont les deux processus essentiels de génération d'électrons de conduction dans un isolant solide. En effet, lorsqu'un porteur de charge acquiert une énergie suffisante, il peut quitter son environnement électronique créant ainsi une charge libre. Le courant mesuré dans le circuit extérieur est le résultat des effets de l'interface électrode/isolant et du volume. Cependant, ces deux processus sont découplés pour la description analytique de la conduction électrique dans les isolants solides.

I.7.3 Mécanismes contrôlés par l'interface

La conduction dans un matériau diélectrique nécessite l'injection de charges à partir des électrodes dans la bande de conduction de l'isolant ou dans des états localisés. Un schéma idéalisé de l'interface électrode – isolant est représenté sur la figure I.4. Sans champ électrique appliqué, la hauteur de barrière est représentée par la grandeur ϕ_0 . Cette hauteur de barrière dépend de l'énergie du niveau de Fermi du métal constituant l'électrode

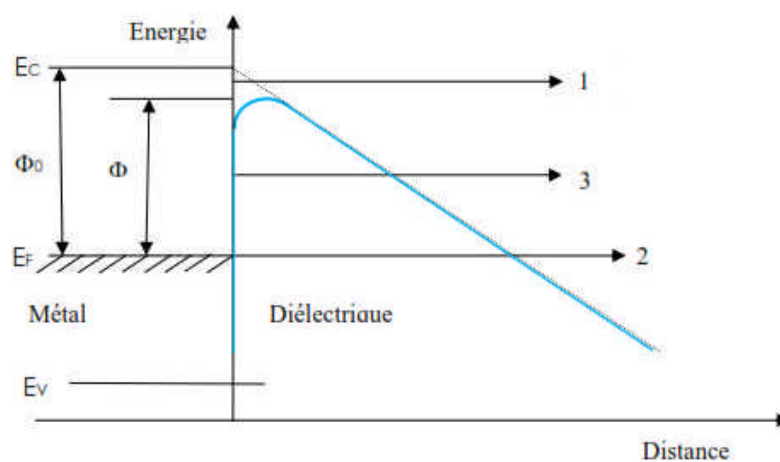


Figure I.4 : Diagramme de bande à l'interface électrode métallique-diélectrique. [1]

Lorsqu'un champ électrique est appliqué à l'isolant, une énergie supplémentaire est fournie aux charges injectées par l'électrode en plus de leur énergie thermique. Cet apport d'énergie conduit à un abaissement de la hauteur de barrière. Les trois mécanismes d'injection de charges sont représentés sur la figure I.4. Si l'injection de charges est faible devant la mobilité de ces mêmes charges dans l'isolant, alors les courants de conduction seront limités par le phénomène d'injection.

I.8. Les polyéthylène (PE)

Polyéthylène est un nom générique utilisé afin de décrire les polyoléfines issues de la polymérisation de l'éthylène (C_2H_4). Ce sont probablement les polymères les plus couramment utilisés, en raison de son faible coût de fabrication et de ses bonnes propriétés physiques et mécaniques. De plus ce polymère permet une mise en forme généralement aisée telle que l'extrusion ou l'injection. Il possède également d'excellentes propriétés d'isolation électrique et de résistance aux chocs et présente une grande inertie chimique et biologique (contact alimentaire). En effet ils sont employés pour la fabrication des sacs plastiques, des bouteilles d'emballage et de certains jouets. Il en existe de nombreux types mais ceux-ci sont généralement classés dans deux grandes familles qui se définissent en fonction de leur masse volumique :

- Polyéthylènes basse densité PEBD : $0.92 \text{ g/cm}^3 < \rho < 0.94 \text{ g/cm}^3$
- Polyéthylènes haute densité PEHD : $0.95 \text{ g/cm}^3 < \rho < 0.97 \text{ g/cm}^3$

Ajouté à ces deux types, on peut obtenir par réticulation le polyéthylène réticulé chimiquement dit PRC. Le polyéthylène est un matériau thermoplastique obtenu par polymérisation de l'éthylène (C_2H_4), menant à des macromolécules composées par la répétition du motif CH_2 Comme le montre la figure I.5 ci-dessous :

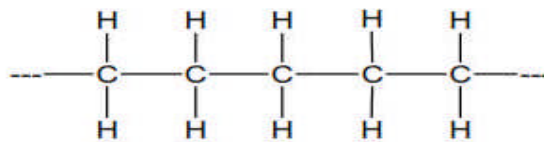


Figure I.5 : Fraction du Polyéthylène [24].

I.9 Polyéthylène réticulé chimiquement(PRC)

Les bonnes propriétés PE feraient de lui un choix judicieux dans l'isolation des câbles moyenne et haute tension, mais présente toutefois un crucial inconvénient qui est celui d'une basse température de service qui atteint à son maximum 75 °C, pour y remédier, on procède à la réticulation, et augmenter par conséquent sa température maximale de service à 90°C et la température maximale de court-circuit à 250 °C. [35] Le polyéthylène réticulé (XLPE) est une forme de polyéthylène basse densité dans lequel les chaînes moléculaires individuelles sont liées les unes aux autres pour former un polymère en réseau avec toutefois des réseaux beaucoup moins denses que dans le cas des résines époxydes par exemple. Par rapport au LDPE, ce sont principalement les propriétés thermomécaniques qui sont améliorées. Le matériau est plus complexe, chimiquement et structurellement que le LDPE.

I.9.1. Type de réticulation Le polyéthylène bas densité est réticulé par trois différentes techniques [2] :

a) Par irradiation

La réticulation par irradiation Bêta est un processus chimique, où l'échantillon est simplement sujet à une dose d'électrons de haute énergie pendant un temps correspondant à une dose calculée pour le degré nécessaire de réticulation. Celle-ci se passe à la température ambiante et à l'état solide.

b) Par peroxyde

La réticulation par le peroxyde est la technique la plus utilisée ces dernières années où le polyéthylène basse densité réticulé par le peroxyde est devenu le matériau isolant le plus dominant pour les câbles électriques à moyen et haut voltage.

c) Par addition de silane

La réticulation par les silanes est l'une des plus importantes techniques de réticulation. Elle a été introduite en 1968 à travers le processus de Sioplas. Le PRS est généralement utilisé pour l'isolation des câbles électriques à bas voltage. L'utilisation du polyéthylène réticulé par le silane se développe pour l'isolation des câbles à haute tension [2].

I.10 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons en premier lieu donné quelques généralités sur les polymères. En effet, nous avons donné des définitions des différentes structures d'un polymère et leurs classifications. Par la suite, nous avons dressé un état de l'art des phénomènes de conduction électrique dans les isolants solides et des phénomènes de polarisation diélectrique. Le but de ce chapitre est de fournir une base théorique utile pour l'interprétation des résultats expérimentaux

Chapitre II

Vieillissement électrique des polymères

II.1 Introduction

Bien que la fonction principale du polymère est d'assurer l'isolation électrique, il lui est aussi demandé une bonne résistance aux contraintes mécaniques et thermiques. La compréhension des mécanismes et des phénomènes de vieillissement conduisant soit à la perte, réversible ou non, des propriétés fonctionnelles, soit à la rupture diélectrique des isolants organiques solides doit pouvoir permettre de prédire le comportement de ce type de matériaux en tenant compte de la durée d'utilisation envisagée pour le système en question (30 à 40 ans pour les câbles de transport d'énergie). [26]

Dans ce sens, la caractérisation des propriétés physico chimiques des polymères et la compréhension des relations complexes existant entre la structure, les propriétés et le vieillissement est primordiale.

Dans la première partie de ce chapitre, on mettra l'accent sur les facteurs essentiels du vieillissement électrique des polymères et les différents mécanismes de leur claquage.

Dans la deuxième partie, on procédera à une présentation succincte des approches existantes (Modèles de durée de vie).

II.2 Vieillessement électrique

Le vieillissement électrique est caractérisé par une dégradation des propriétés diélectriques du matériau, sous l'action prolongée d'une contrainte électrique (champ électrique) relativement élevée. Il est caractérisé par l'augmentation des pertes diélectriques et une diminution de la résistivité transversale du matériau. [38]

La dégradation est particulièrement accentuée par la présence d'impuretés de différentes natures, plus particulièrement des vacuoles de gaz au sein du diélectrique. Ces impuretés sont en général le siège de décharges partielles qui peuvent engendrer après un temps relativement long l'érosion du matériau et finalement la rupture diélectrique. [38]

II.2.1 Scénario standard du vieillissement

Le but de cette partie est de présenter d'une façon très brève l'enchaînement de mécanismes probables ayant lieu à partir de la mise en service d'un isolant organique jusqu'à la rupture de ce dernier. La Figure II.1 présente un possible scénario du phénomène de vieillissement : Un isolant organique en début de service ($t=0$ sur la Figure II.1) peut être avec ou sans défaut initial (cavités, trous...). Sous l'application d'une tension, il y a alors

croissance ou apparition de vacuoles au sein de l'isolant ($t=t_1$ jusqu'à t_2). Ce phénomène n'est autre que le vieillissement électrique qui pourra conduire à la dégradation si des décharges prennent naissance dans une vacuole ($t=t_3$) et si une arborescence se développe ($t=t_4$). Cette dégradation est susceptible à son tour de conduire l'isolant à la fin de sa vie c'est-à-dire à une rupture ($t=t_5$). [27]

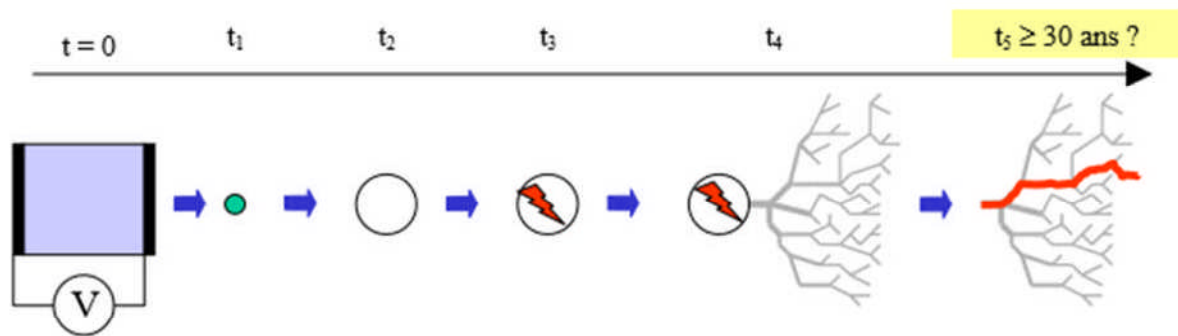


Figure II.1 : Schéma représentant le scénario standard de vieillissement [27]

II.2.2 Facteurs essentiels du vieillissement électrique des polymères

II.2.2.1 Arborescence électrique

L'arborescence électrique s'agit d'une concentration locale du champ provoquée soit par des aspérités métalliques, soit par des éléments polluants. Dissado et Fothergill dénombrent trois sous catégories d'arborescences électriques : l'arborescence type branche, buisson et le mélange des deux : l'arborescence branche buissonnante. Une image de ces trois types d'arborescence est illustrée dans la figure II.2



a) Branche



b) Buisson



c) Branche buissonnante

Figure II.2 : Les trois sous catégories de l'arborescence électrique [4]

Les arborescences de type branche ont des diamètres d'environ de 30 μm pour le tronc et de l'ordre du 1 μm pour les ramifications. Les arborescences type buisson forment des tubes creux de forte densité. En ce qui concerne les arborescences type branche buissonnante, elles regroupent les mêmes caractéristiques. Des études ont montré l'importance de l'amplitude du champ électrique sur la forme des arborescences qui dépend aussi de la fréquence du signal électrique, de la forme des électrodes et du type de matériau utilisé. [28]

II.2.2.2 Charges d'espace

Un isolant est dit parfait si seulement s'il présente une parfaite pureté de telle sorte que les seules sources de charges internes soient les atomes du réseau. En réalité, il n'existe pas d'isolants parfaits, ils présentent souvent une très faible conductivité due essentiellement à la structure de l'isolant et à l'existence de sources de charges autres que les atomes du réseau. Ainsi, Lorsqu'un diélectrique est soumis aux différentes contraintes, nous pouvons observer dans certaines régions du matériau un excès de charges électriques que nous appelons charges d'espace. La charge d'espace est un facteur majeur dans le comportement diélectrique des isolants (la fiabilité à haute tension, le facteur de dissipation diélectrique en fonction de la température et la fréquence). Depuis plusieurs décennies, beaucoup d'études s'intéressent au rôle de la charge d'espace dans le vieillissement diélectrique des isolants. [29]

❖ Origine de la charge d'espace

Selon les mécanismes de génération, les charges d'espace sont classées en plusieurs types comme illustré à la Figure II.3, ces différents mécanismes sont :

- 1) Dipôles : d'orientation et de déformation.
- 2) Les porteurs ioniques : peuvent être générés à partir des électrodes. Ils peuvent résulter, soit de la diffusion vers l'isolant d'impuretés ionisables à partir d'électrodes non métalliques, soit de l'hydrolyse de l'eau présente sous forme de vapeur en surface des électrodes.
- 3) Electro-dissociation : Une espèce initialement neutre d'un point de vue électrique se dissocie en des espèces chargées sous l'action d'un champ électrique. Dans ce cas, les porteurs de charge résultent, soit de la dissociation de la molécule de l'isolant elle-même, soit des additifs et impuretés qui peuvent se dissocier, éventuellement suite à des réactions électrolytiques.

- 4) Interaction : Les charges d'espaces se forment aussi sous l'action d'interaction de l'isolant avec des rayonnements ionisants (UV, X et γ) ou avec des particules énergétiques.
- 5) Injection d'électrons : La génération des charges d'espace peut avoir lieu aux interfaces métal – isolant. C'est le cas d'une injection des porteurs électroniques. En effet, l'électron peut franchir la barrière métal-isolant par deux mécanismes, effet Schottky et effet Fowler-Nordheim. Il faut également noter que les mécanismes cités ci-dessus n'interviennent qu'en présence d'un champ électrique et/ou de la température.
- 6) Charges images : En réponse aux autres charges d'espaces
Décharges électriques, souvent inévitables dans un grand nombre de dispositifs du génie électrique, sont aussi des sources de particules chargées.

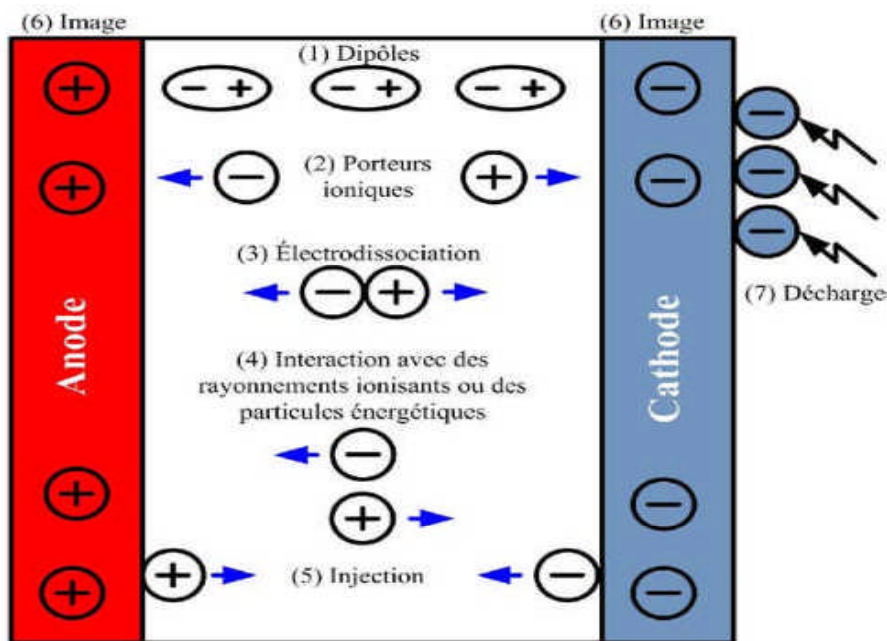


Figure II.3 : Différents mécanismes de génération des charges d'espace [30]

❖ Effet de la charge d'espace sur le vieillissement électrique

Les études effectuées ces dernières années ont montré la contribution directe de la charge d'espace au phénomène de vieillissement électrique du matériau polymère. [31] Dissado, Mazzanti et Montanari décrivent l'influence des charges d'espace sur le vieillissement comme suit : [29, 32]

En considérant qu'un matériau polymère est constitué de sites réactionnels, chimiques ou morphologiques, soumis à une réaction locale, l'isolant arrive en fin de vie lorsqu'une quantité critique de sites est passée de l'état initial à l'état final. Ces états sont représentés respectivement en 1 et 2 sur la figure **II.4(a)**. A l'issue de la fabrication, la quasi-totalité des sites est dans l'état 1 puis l'équilibre thermodynamique tend à s'établir. Si, à l'équilibre, la quantité critique de sites à l'état 2 n'est pas atteinte, l'isolant a une durée de vie qui n'est pas affectée par la contrainte.

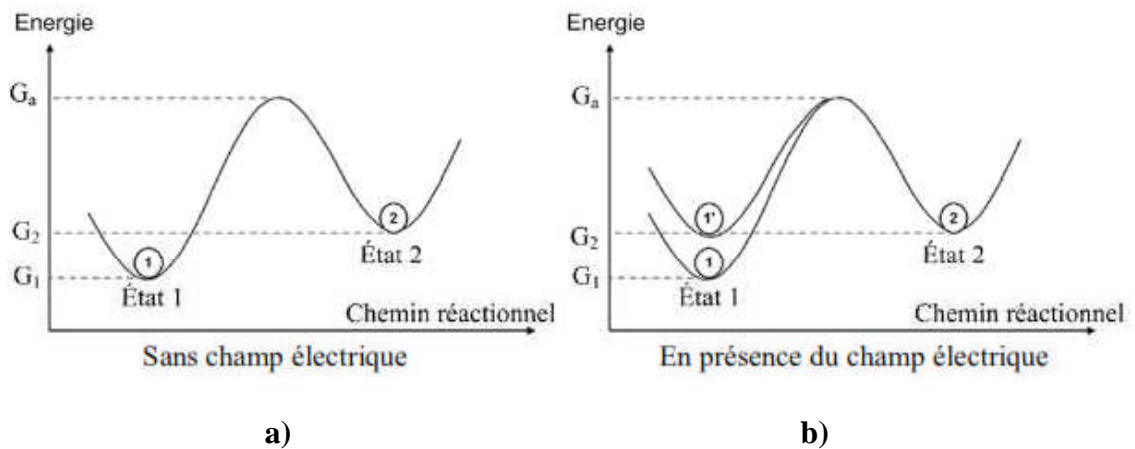


Figure II.4 : Diagramme d'énergie des "sites réactionnels" [6]

Lorsque le matériau est soumis à un champ électrique, des charges électriques sont injectées dans le matériau, atteignant à plus ou moins long terme une densité stationnaire. L'effet des charges d'espace sur ce modèle est de deux natures :

- 1) L'énergie électrostatique générée par la présence des charges augmente l'énergie des sites réactionnels. Cependant, l'ensemble des états (1 et 2) est affecté par ce gain en énergie et l'équilibre n'est pas modifié. Un processus de vieillissement peut toutefois intervenir par réaction chimique avec les charges injectées.
- 2) La présence des charges d'espace induit une contrainte mécanique dans le matériau. L'énergie mécanique mise en jeu peut alors être absorbée par les sites réactionnels à l'état 1, facilitant alors la transition vers l'état 2 (figure **II.4(b)**). Les contraintes mécaniques résiduelles peuvent être à l'origine de défauts dont la présence est fatale à l'isolant (fissures, vacuoles).

II.2.2.3 Décharges partielles et cavités

❖ Cavités gazeuses

Elle peut avoir deux origines :

- Microcavités préexistantes au sein du matériau

-Cavités créées au cours de la mise en œuvre ou du fonctionnement du système

• Microcavités préexistantes au sein du matériau

Deux cas sont à envisager en fonction de la nature réticulée ou non réticulée de la structure du matériau. La réticulation s'accompagne d'un dégagement de gaz qui a tendance à former des bulles si la technologie de fabrication n'est pas bien adaptée : pression ou longueur de refroidissement insuffisante. Dans le cas d'un matériau réticulé, c'est le procédé de la réticulation qui est responsable de la formation de cavités. Dans le cas d'un matériau semi-cristallin non réticulé c'est la cristallisation qui pourrait donner naissance à des cavités de dimensions beaucoup plus petite. [4]

a. Cavités d'eau

Elles se forment dans le matériau lorsque la réticulation est réalisée par voie humide. Dans le polyéthylène, à la température de fusion, l'eau est plus soluble dans le matériau qu'à température normale et se mélange au polymère. Au refroidissement, les phases se séparent et donnent naissance à la formation de gouttelettes d'eau qui diffusent au bout d'un certain temps, laissant des cavités. [4]

b. Cavités de gaz

L'agent de réticulation le plus utilisé est le dicumyle peroxyde (DCP). Certains produits de décomposition de cet agent sont gazeux (méthane). Ils restent piégés dans le matériau au cours de la cristallisation, puis diffusent laissant ainsi des microcavités localisées. [4]

• Cavités créées au cours de la mise en œuvre

Des décollements peuvent être créés entre les parties isolante et conductrice, suite à des défauts de fabrication ou à l'existence de contraintes mécaniques consécutives au fonctionnement du système.

❖ Décharge partielle dans les cavités

Une décharge partielle est un claquage n'intervenant que sur une épaisseur limitée de l'isolant. Dans les solides, elle se localise dans une cavité, due à un défaut ou à une "érosion" du matériau. Le phénomène de décharge partielle intervient lorsque des charges sont accumulées sur les bords d'une cavité. Lorsque la quantité de charges accumulées, donc le champ dans la vacuole est suffisant, un électron germe présent dans la cavité peut provoquer l'ionisation du gaz par un mécanisme d'avalanche électrique. L'érosion due à l'impact des charges sur la paroi contribue à la croissance du défaut, début de l'arborescence.

II.2.2.4 Décharge de surface qui sont des décharges prenant naissance au point « triple » métal /isolant/air lorsqu'y a un défaut (goutte d'eau, pollution, poussière...) et se développant en surface de l'isolant. Elles se manifestent lorsqu'un champ tangentiel important existe à la surface d'un diélectrique. [34] Ces décharges provoquent une augmentation de la conductivité de surface, et donc une diminution de la résistance superficielle. [6]

II.3 Rupture diélectrique-Mécanismes de claquage

II.3.1 Claquage thermique

Le concept général du mécanisme de la rupture diélectrique par phénomène thermique consiste à dire que l'énergie électrique est transférée au matériau solide pour l'échauffer. L'équilibre thermique est obtenu lorsque la dissipation thermique par diffusion équilibre la production de chaleur due à la conduction électrique. Lorsque cet équilibre est rompu, un phénomène d'emballement se produit compte tenu de la forte dépendance de la conductivité électrique en fonction de la température. L'équation thermique s'écrit : [28]

$$C_v \cdot \frac{\delta T}{\delta t} - \text{div}(k \cdot \vec{\nabla} T) = \sigma E^2 \quad (\text{II.1})$$

Avec :

- C_v : chaleur spécifique de l'isolant

- k : conductivité thermique

- $\vec{\nabla} T$: gradient de la température

- σ : Conductivité électrique

- t : temps

- E : champ électrique appliqué

Le premier terme de gauche désigne la chaleur emmagasinée.

Le deuxième terme correspond à la dissipation thermique de l'échantillon.

Le membre de droite est l'apport d'énergie d'origine électrique : il représente la production de chaleur. La résolution de cette équation consiste à déterminer pour chaque point de l'échantillon la température-T en fonction du temps-t et du champ électrique-E pour que l'échantillon ne subisse pas de rupture. Cette équation n'est résolue que par des méthodes numériques du fait de la multitude des variables qui composent les termes de l'équation :

$$- \sigma = f(E, T)$$

$$- T = f(t, x, y, z)$$

$$- E = f(t, x, y, z)$$

$$- k = f(T, x, y, z)$$

Avec x, y, z : coordonnées dans un repère cartésien. La rupture diélectrique par effet thermique est caractérisée par :

- l'échauffement de l'échantillon.
- le temps court nécessaire au développement du claquage (quelques microsecondes)
- le champ de claquage dépendant de l'épaisseur de l'isolant, de la géométrie des électrodes ainsi que de leurs propriétés thermiques et celles du milieu ambiant.

Le champ de rupture diminue si la fréquence de la tension appliquée augmente puisqu'il faut tenir compte des pertes diélectriques lors de l'échauffement de l'isolant. [28]

II.3.2 Claquage électromécanique

La rupture électromécanique est due à l'apparition d'une force électrostatique de compression impliquant une diminution de l'épaisseur du matériau. Cette force électrostatique est générée par l'attraction mutuelle des électrodes, phénomène facilité par une perte de la rigidité mécanique du matériau consécutive à une élévation de température. Le champ électrique appliqué sur celui-ci devient plus important (puisque l'épaisseur est plus faible pour une même tension appliquée sur l'échantillon). Cette force électrostatique est générée par l'attraction mutuelle des électrodes. Il est possible de dresser les équations relatives à la force électrique et la pression électrique d'un système d'électrodes planes de surface - S en vis-à-

vis, d'une part, et de la compressibilité du matériau de module d'Young - Y (module d'élasticité), d'autre part. [28]

A l'équilibre, la pression électrostatique - P_e qui s'exerce sur le diélectrique est compensée par sa rigidité mécanique. La relation à l'équilibre est donc :

$$P_M = P_e$$

$$\frac{1}{2} \cdot \epsilon_0 \cdot \epsilon_R \cdot \left(\frac{V}{e}\right)^2 = Y \ln\left(\frac{e_0}{e}\right) \quad (\text{II.2})$$

D'où la relation $V = f(e)$:

$$V = e \cdot \left[\frac{2 \cdot Y}{\epsilon_0 \epsilon_R} \ln\left(\frac{e_0}{e}\right) \right]^{1/2} \quad (\text{II.3})$$

Avec : e : épaisseur du matériau

e_0 : épaisseur initiale du matériau

II.3.3 Claquage électrique

Le claquage électronique (électrique) est dû aux électrons accélérés par le champ dans la bande de conduction qui acquièrent suffisamment d'énergie cinétique pour induire des ionisations par collisions et conduire à la rupture de l'isolant : il y a stabilité s'il existe un équilibre entre gain d'énergie cinétique et perte d'énergie par collisions. Dans la littérature, on distingue souvent les concepts de rupture intrinsèque et de rupture par avalanches. [28]

II.4 Lois de vieillissement électrique et modèles de durée de vie [2,34]

❖ Modèle de puissance inverse

Le modèle de la puissance inverse est, en général, le modèle le plus fréquemment utilisé dans les études du vieillissement électrique des isolants solides. Ce modèle empirique a été introduit pour la première fois par Peek en 1929. Il est donné par la relation suivante :

$$t = CF^{-n} \quad (\text{II.4})$$

Où :

$$\log(t) = \log C - n \log F \quad (\text{II.5})$$

Avec :

-t : durée de vie

-F : champ électrique appliqué

-C : paramètre à déterminer à partir des essais

-n : coefficient d'endurance électrique à déterminer expérimentalement

Afin de vérifier la validité de l'application du modèle, il faut tracer la courbe donnant F en fonction de t en coordonnées bi logarithmique. Des difficultés se présentent lors de l'extrapolation des résultats à des champs électriques très faibles. En effet, l'extrapolation de la droite de durée de vie conduit à conclure que l'isolant claquera au bout d'un certain temps à champ nul. Afin de tenir compte du champ seuil, une autre forme de modèle de puissance inverse est donnée par :

$$t = t_s \left[\frac{F}{F_s} \right]^{-n} \quad (\text{II.6})$$

Où : -t : durée de vie

-F : champ électrique appliqué

- F_s : champ électrique seuil

- t_s : durée de vie lorsque $F=F_s$

-n : coefficient d'endurance en tension

Le coefficient n constitue un critère d'évaluation de l'endurance en tension du matériau : plus sa valeur est élevée meilleur est l'isolant. Ce coefficient est compris entre 4 et 20.

❖ **Modèle exponentiel**

Dans le cas du modèle exponentiel, la relation entre le champ électrique appliqué et la durée de vie est donné par :

$$t = C \exp(-kF) \quad (\text{II.7})$$

Ou :

$$\log(t) = \log C - kF \quad (\text{II.8})$$

Avec : -t : durée de vie

-F : champ électrique appliqué

-C et k : constantes déterminées expérimentalement

Pour valider le modèle, il faut représenter la courbe donnant F en fonction de t en coordonnées semi-logarithmiques (axe des ordonnées en échelle logarithme). Si cette courbe est une droite, l'hypothèse d'utilisation du modèle est fondée.

En tenant compte du champ seuil, une autre forme de ce modèle est donnée par :

$$t = \frac{k_2}{F - F_s} \exp[-k_1(F - F_s)] \quad (\text{II.9})$$

Avec : -t : durée de vie

-F : champ électrique appliqué

- F_s : champ électrique seuil

- k_1 et k_2 : constantes déterminées expérimentalement

Ce modèle est aussi empirique sans bases physique. Il permet lui aussi une analyse rapide des résultats de vieillissement et une évaluation approximative des conditions de service. L'application de ce modèle et de modèle de la puissance inverse au vieillissement d'une grande variété des isolants polymères a été bien exposée dans la littérature.

Si on considère que le matériau est soumis simultanément au champ électrique et à la température, plusieurs modèles de durée de vie ont été développés.

❖ **Modèle de Fallou**

L'hypothèse de base de ce modèle suppose que l'effet de la température sur la durée de vie est donné par une relation de type Arrhenius :

$$t = \exp\left(A(F) + \frac{B(F)}{T}\right) \quad (\text{II.10})$$

Où :

$A(F)=A_1 + A_2 F$, $B(F)= B_1 + B_2 F$ sont déterminés expérimentalement à partir des temps de claquage à une température constante.

La modèle ne prend pas en considération l'existence du champ seuil, donc l'extrapolation aux champs très faibles doit être faite avec énormément de précaution. Après la substitution de $A(F)$ et $B(F)$, le modèle devient comme suit :

$$t = \exp\left(A_1 + A_2 F + \frac{B_1 + B_2 F}{T}\right) \quad (\text{II.11})$$

❖ **Modèle de Ramu**

L'auteur considère que la contrainte électrique est le principal facteur de dégradation et que la contrainte thermique agit seulement comme catalyseur dans le processus de dégradation pour les deux contraintes combinées. Ce modèle est basé sur la théorie physico-chimique d'Eyring tenant compte du champ et la température seuil. Il est présenté sous la forme suivante :

$$t(T, F) = K(t) \left(\frac{F}{F_s}\right)^{-n(T)} \exp(-B\Delta T) \quad (\text{II.12})$$

Où : $-t(T, F)$: la durée de vie de l'isolant soumis à l'action simultanée d'une température T et d'un champ électrique F

$-F_s$: le champ seuil au-dessous duquel cesse le vieillissement électrique

$-B$: constante d'Arrhenius

$-K(T)$ et $n(T)$ sont les paramètres de la loi de puissance inverse en fonction de la température

$$K(T) = \exp(K_1 - K_2(T)) \text{ et } n(T) = n_1 - n_2\Delta T$$

$$\text{Avec : } \Delta T = \frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}$$

T_0 : température ambiante

❖ Modèle de Simoni

D'après L.Simoni, le vieillissement se manifeste par la dégradation progressive des propriétés physiques. Le vieillissement serait donc une fonction de ces propriétés variant de zéro jusqu'à une valeur limite correspondant au claquage. Le critère d'évaluation du vieillissement tient compte seulement des propriétés physiques dont la variation entraîne un claquage. Exemple : la rigidité diélectrique qui est une propriété physique dont la diminution provoque le claquage.

L'équation du vieillissement est donnée par :

$$A = \int_0^t R dt \quad (\text{II.13})$$

R : vitesse de variation du vieillissement donnée par $R = \frac{dA}{dt}$

Lorsque la propriété P décroît et atteint sa valeur limite P_L , le temps correspondant à cette valeur représentera le temps de claquage. L et le vieillissement A sera à sa valeur maximal A_L .

Pour un vieillissement sous une contrainte multiple (électro thermique), L.Simoni a mentionné que la vitesse de variation du vieillissement a une origine thermodynamique et est donnée par l'expression suivante :

$$R = A \exp\left(\frac{-B}{T}\right) \exp\left[\left(a + \frac{b}{T}\right) f(F)\right] \quad (\text{II.14})$$

Avec : $f(F) = \ln\left(\frac{F}{F_0}\right)$

F_0 : champ seuil sous lequel il n'y a plus de vieillissement électrique

Simoni a déduit le premier modèle qui est compatible avec celui de la puissance inverse, le modèle est donné par :

$$t(T, F) = t_0 \exp\left[-\Delta B \left(\frac{1}{T}\right) \left(\frac{F}{F_0}\right)^{-N}\right] \quad (\text{II.15})$$

$$F > F_0$$

Avec : t_0 : le temps de claquage à température ambiante et pour $F=F_0$

$$N = n - b\Delta\left(\frac{1}{T}\right), \text{ n est une constante et } \Delta\left(\frac{1}{T}\right) = \frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}$$

Comme alternative du modèle précédent, Simoni a proposé un deuxième modèle basé un choix de la fonction $f(F) = F - F_0$. Ce modèle est modèlé par l'équation suivante :

$$t = \frac{1}{T} \exp\left(\frac{B}{T}\right) \exp\left[-\left(a + \frac{b}{T}\right)(F - F_0)\right] \quad (\text{II.16})$$

$$F \geq F_0$$

❖ Modèle de Montanari

Ce modèle se repose sur deux hypothèses :

- La première est que le traitement statistique des données de vieillissement des isolants solides soumis à l'action d'une contrainte électrique ou de deux contraintes électrique F et thermique T simultanément, se fait par la statistique de Weibull. La fonction cumulative de distribution de cette statistique s'écrit :

$$F(t) = 1 - \exp\left(\frac{-t}{\alpha}\right)^\beta \quad (\text{II.17})$$

Avec : t : temps de claquage

α : Paramètre d'échelle

β : Paramètre de forme

Les paramètres d'échelle α et de forme β ne sont pas constants mais fonction des contraintes appliquées : $\alpha = \alpha(F, T)$ et $\beta = \beta(F, T)$

- La seconde hypothèse est que ce modèle s'applique aux matériaux présentant un champ électrique seuil, en d'autres termes, des matériaux dont la représentation des résultats de vieillissement sur une échelle logarithmique montre une linéarité sur une large gamme du temps puis une tendance vers un champ seuil, valeur pour laquelle la durée de vie tend vers l'infini.

Le modèle de durée de vie adopté est le modèle de la puissance inverse :

$$t = t_s \left[\frac{F}{F_s} \right]^{-n} \quad (\text{II.18})$$

Où : -t : la durée de vie sous contrainte électrique F

- F_s : contrainte électrique de référence à la température T, c'est la valeur la plus élevée droite de durée de vie à la température T

- t_s : temps de claquage correspondant à la contrainte électrique F_s et à la température

-n : coefficient d'endurance en tension à la température

Ce modèle est appelé modèle de la puissance inverse à seuil. L'auteur considère l'expression de la durée de vie obtenue, comme l'expression du paramètre d'échelle de la fonction cumulative de la distribution de Weibull $\alpha(F, T)$. Le modèle statistique de la durée de vie est le suivant :

$$F(t, F, T) = 1 - \exp - \left[\left(\frac{t}{t_s} \left(\frac{F}{F_s} \right)^n \right) \right]^\beta \quad (\text{II.19})$$

❖ Modèle de Crine

Le modèle de Crine est un modèle physique et est basé sur deux hypothèses :

- La plupart des processus de vieillissement des diélectriques sont activés thermiquement.
- Plusieurs propriétés de différents matériaux varient avec l'énergie libre d'activation ΔG et non pas avec l'énergie apparente d'activation E. Par conséquent, l'entropie d'activation ΔS , qui n'apparaît pas dans l'équation d'Arrhenius, ne peut être négligée. Ces deux points justifient l'utilisation de la théorie d'Eyring. D'après cette théorie, une énergie libre d'activation ΔG requise lors d'un processus activé thermiquement :

$$\Delta G = \Delta H - T\Delta S \quad (\text{II.20})$$

Où : ΔH : est l'enthalpie d'activation

ΔS : est l'entropie d'activation

T : température absolue

Le temps nécessaire pour traverser la barrière d'énergie à l'équilibre est exprimé par :

$$t = \frac{h}{kT} \exp \frac{\Delta G}{kT} = \frac{h}{kT} \exp \frac{\Delta H}{kT} \exp \frac{-\Delta S}{k} \quad (\text{II.21})$$

Où : k : constante de Boltzmann

h : constante de Planck

L'auteur propose que le temps donné par l'équation puisse décrire les variations du temps de claquage ou l'inverse de la fréquence maximale de relaxation en fonction de la température. Sous la contrainte électrique la hauteur de la barrière est réduite, le temps devient alors :

$$t = \frac{h}{kT} \exp \left(\frac{\Delta G - e\lambda F}{kT} \right) \quad (\text{II.22})$$

Où : F : champ électrique appliqué

e : la charge électronique

λ : Largeur de la barrière ou libre parcours moyen des porteurs

II.5 Conclusion

Pour ce chapitre, on a évoqué les facteurs essentiels qui contribuent à la dégradation des polymères sous champs électrique. On a aussi présenté les différentes approches existantes (Modèles de durée de vie).

Chapitre III

Techniques expérimentales

III.1 Introduction

L'objectif de notre travail consiste à caractériser les propriétés diélectriques, mécaniques, et physico-chimiques du polyéthylène réticulé chimiquement (PRC) soumis à un vieillissement électrique.

Ainsi, plusieurs techniques expérimentales ont été utilisées. Dans ce qui suit, nous allons en premier lieu exposer le mode opératoire utilisé pour l'usinage et le conditionnement des éprouvettes. Par la suite, nous décrirons d'une manière plus détaillée les techniques expérimentales utilisées. Les expériences ont été réalisées dans les laboratoires de haute tension au sein de notre département et de physique au sein de l'entreprise Electro-Industries AZAZGA.

III.2 Vieillissement électrique

Le vieillissement électrique du PRC est obtenu en plaçant des éprouvettes en sandwich entre deux électrodes planes, en insérant une barrière diélectrique sous une tension alternative de $5 \text{ kV}_{\text{eff}}$ pendant différentes périodes allant de 2 à 24 heures. Le schéma du dispositif expérimental utilisé pour cette étude est représenté par la figure III.1 Les électrodes planes utilisées sont en cuivre, de 5 cm de diamètre ayant le profil de Rogowski. L'électrode supérieure est reliée à la haute tension et l'électrode inférieure à la terre.

La tension appliquée est délivrée par un transformateur d'essai dont les caractéristiques sont : $U=100 \text{ kV}$, $f = 50\text{Hz}$, $P= 10\text{kVA}$. La variation de la tension se fait à l'aide d'un autotransformateur qui se trouve au niveau du pupitre de commande.

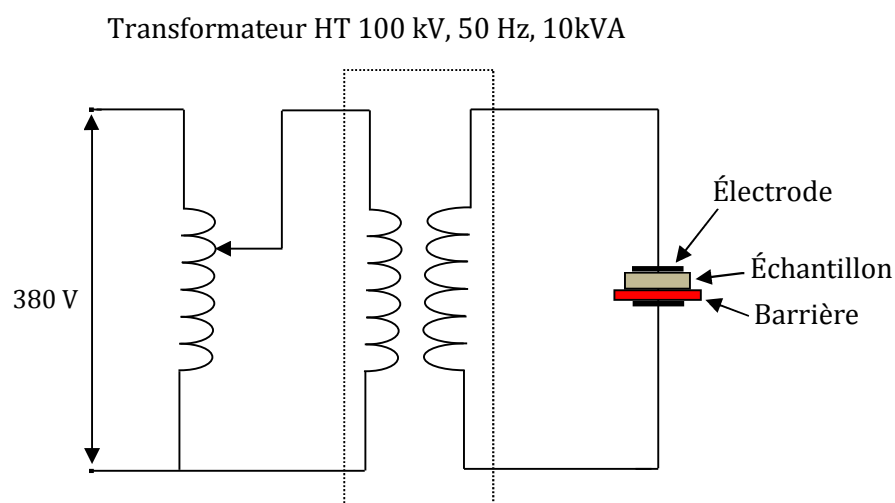


Figure III.1 : Montage expérimental pour le vieillissement électrique



Figure III.2 : Support des électrodes

III.3 Caractéristiques du matériau utilisé (PRC)

Le matériau de l'étude est celui utilisé par la société ENICAB de Biskra (Filiale de General cable) pour l'isolation des câbles moyenne et haute tension. Les granulés du polyéthylène reticulable proviennent de la firme autrichienne BOREALIS, commercialisé sous l'appellation LE4201R. Le matériau est utilisé pour l'isolation des câbles de transport d'énergie électrique en haute tension (supérieure à 72 kV).

Propriété	Norme	Valeur
Constante diélectrique	IEC 60250	2.3
Densité Volumique	//	500-600 Kg/m ³
Rigidité diélectrique (50Hz)	IEC 60243	>22 kv/mm
Facteur de pertes (50Hz)	IEC 60250	0.0003
Résistivité Volumique sous DC	IEC 60093	10 ¹⁵ Ohm.cm
Résistance à la traction (250mm / min) ²	ISO 527	>17 Mpa
Allongement à la rupture (250mm / min) ²	ISO 527	>450%
Allongement à chaud HST (200°, 0.2Mpa)	IEC 60811-2-1	75%

Tableau III.1 : Propriétés du polyéthylène utilisé pour la fabrication de plaques du PRC

III. 4 Usinage et conditionnement des éprouvettes

Afin d'assurer la reproductibilité et la précision des résultats, on usine des échantillons de mêmes dimensions appartenant au même moulage pour chaque type de vieillissement et pour chaque essai. 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.

Les éprouvettes utilisés pour les différents essais sont de formes carré (6cm×6cm), à l'exception des essais mécaniques où les éprouvettes sont sous formes d'haltères (figure **III.3**) conformément à la norme CEI 60811.1.1. [36] Les haltères destinées à l'étude de l'effet du vieillissement électrique sont découpées en éprouvettes (6cm×6cm) soumises au champ électrique, ainsi la découpe se fait alors après exposition à la contrainte et non pas avant comme c'est le cas pour les autres vieillissements.

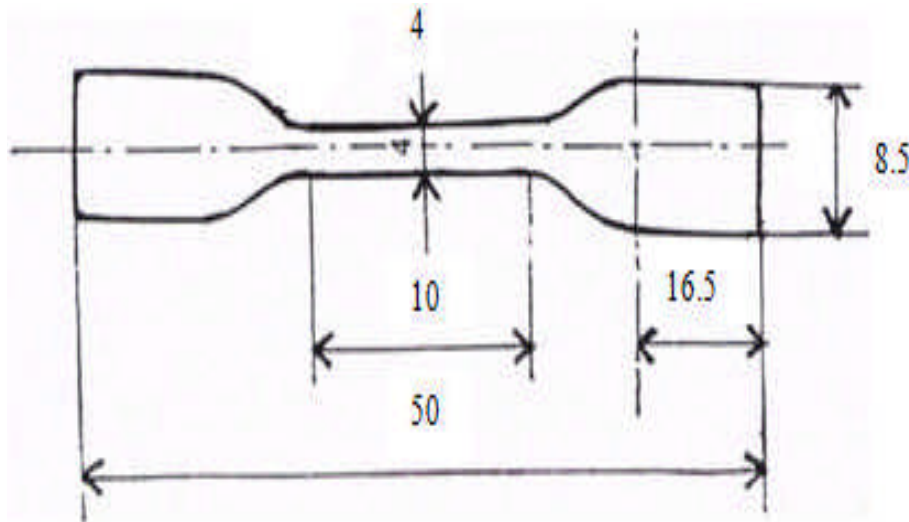


Figure III.3 : Dimensions en millimètres des éprouvettes en forme d'haltères utilisés pour les essais mécaniques [36]

Après prélèvement et avant chaque essai, les éprouvettes sont conditionnées dans un dessiccateur pendant au moins 20 heures conformément aux recommandations de la norme CEI 540. [39]



Figure III.4: Dessiccateur utilisé pour le conditionnement des éprouvettes

III.5 Méthode expérimentale

III.5.1 Propriétés électriques

III.5.1.1 Caractérisation diélectrique

Les caractéristiques diélectriques des éprouvettes sont mesurées à l'aide d'un impédance mètre de type Instek –LCR 817. Cet appareil permet la mesure précise de la permittivité relative, du facteur de dissipation et de la résistivité transversale, sous faible tension (excède pas 2V), sur une gamme de fréquence allant de 12Hz à 10000Hz. L'impédance mètre est reliée à une cellule de mesure qui comporte deux électrodes cylindriques et identiques en bronze. Les éprouvettes soumises au contrainte électrique sont placées dans cette même cellule connectée à l'analyseur d'impédance avec des câbles les plus courts possibles. Les propriétés diélectriques sont mesurées sous une tension de 1V avec des fréquences allant de 500Hz à 10000Hz.

- **Permittivité relative**

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

$$\varepsilon^* = \varepsilon' - j\varepsilon'' \quad (\text{III-1})$$

La partie réelle ε' de la permittivité complexe ε^* , représente la permittivité relative ou la constante diélectrique, elle nous renseigne sur la capacité du diélectrique à stocker la charge

en présence du champ électrique. La permittivité relative est en fonction de l'épaisseur de l'éprouvette ainsi que de la géométrie des électrodes de mesure et a comme équation :

$$\varepsilon' = \frac{C \cdot e}{\varepsilon_0 \cdot S} \quad (\text{III-2})$$

Où C : est la capacité de l'éprouvette placée en sandwich entre les électrodes de mesure, e est l'espace inter-électrode qui est égale à l'épaisseur de l'éprouvette, S est la surface de l'électrode de mesure et $\varepsilon_0 = 8.85 \times 10^{-12} \text{ F.m}^{-1}$ est la permittivité du vide.

- **Facteur de dissipation**

Le facteur de dissipation diélectrique, appelé aussi tangente de l'angle de perte ou $\tan \delta$, δ est l'angle complémentaire de déphasage entre la tension appliquée au diélectrique et le courant qui en résulte, en accord avec la théorie de Debye le facteur de dissipation est donné par :

$$\tan \delta = \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'} \quad (\text{III-3})$$

- **Indice de pertes diélectriques ($\tan(\delta)$)**

La partie imaginaire ε'' de la permittivité complexe représente les pertes diélectriques ou bien l'indice de pertes diélectriques. Ces pertes dépendent de la conductivité et des phénomènes de relaxation et de polarisation dipolaire, l'indice de perte est donné par :

$$\varepsilon'' = \tan \delta \cdot \varepsilon' \quad (\text{III-4})$$

- **Résistivité volumique en AC**

La Résistivité volumique en AC est obtenue à partir de la résistance donnée par le LCR mètre, elle est régie par l'équation :

$$\rho = \frac{R \cdot S}{e} \quad (\text{III-5})$$

Où R est la résistance donnée par l'appareil de mesure, S est la surface de l'électrode et e est l'épaisseur de l'échantillon.



Figure III.5 : Montage expérimental utilisé pour la caractérisation diélectrique

III.5.2 Propriétés mécaniques

- **Mesure de la résistance à la traction**

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

$$R_T = \frac{F_t}{S} \quad (\text{III-6})$$

R_T : La résistance à la traction en N/mm^2 .

F_T : La force de traction en N.

S : La section droite de l'éprouvette en mm^2 .

- **Mesure de l'allongement à la rupture**

L'allongement à la rupture est exprimé en % et régit par la relation suivante :

$$A(\%) = \frac{L - L_0}{L_0} \times 100 \quad (\text{III-7})$$

L_0 : La longueur entre les deux repères tracés initialement avant rupture de l'éprouvette ($L_0=10\text{mm}$).

L : La longueur entre les deux repères tracés après rupture de l'éprouvette.

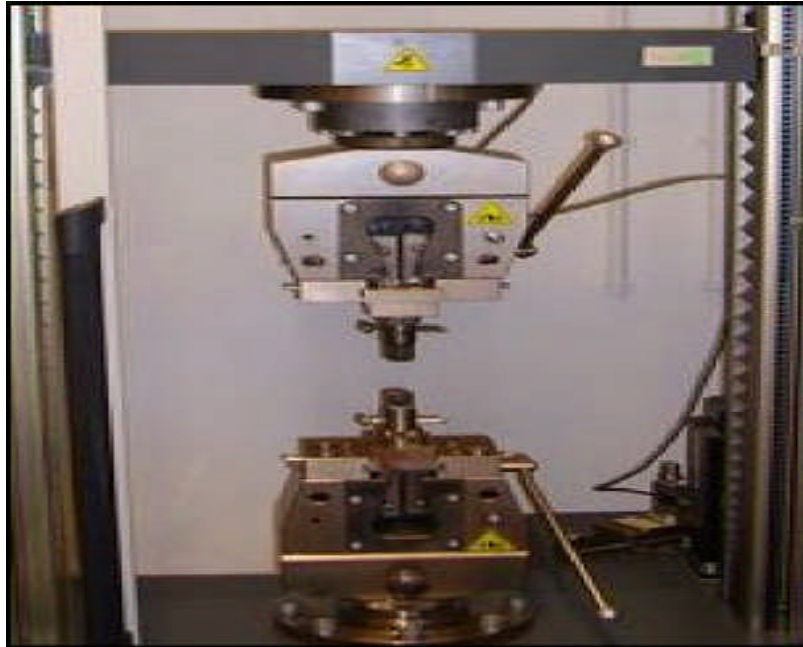


Figure III.6 : Dispositif utilisé pour les essais d'allongement à la rupture et de la résistance à la traction

- **Dureté de surface**

La dureté de surface est un paramètre qui nous permet d'évaluer les propriétés mécaniques des polymères. Elle est directement liée au mécanisme de polymérisation et aux transitions mécaniques, telle que la transition vitreuse. Dans notre étude, la mesure de cette propriété a été effectuée à l'aide d'un testeur de dureté, communément utilisé.

III.5.3 Propriétés physico-chimiques

Les essais sont effectués sous les conditions atmosphériques : $T=23^{\circ}\text{C}$, $h= 80\%$.

- **Microscopie Optique**

Afin d'analyser la surface des échantillons vieillis électriquement et de suivre le changement d'apparence qui a eu lieu, nous avons utilisé un microscope optique de marque Hund WETZLAR qui est relié à un ordinateur.

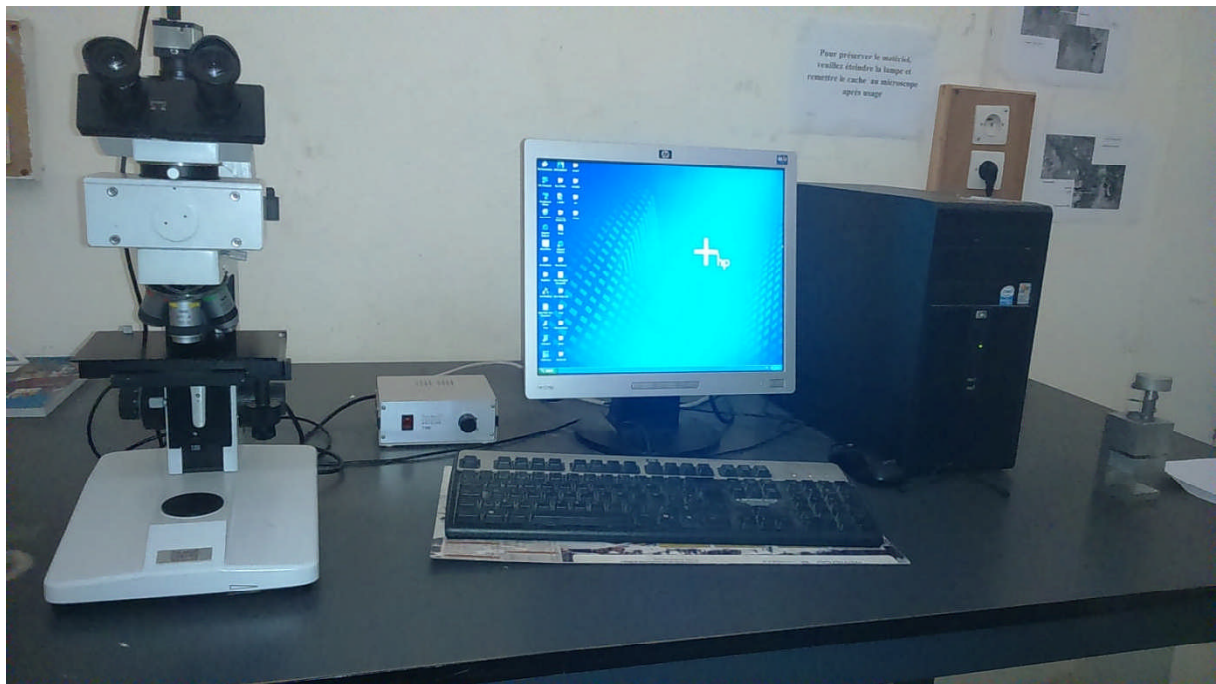


Figure III.7 : Photographie du microscope optique Hund WETZLAR

- **Microscopie électronique à balayage (MEB)**

Nous avons analysé la topographie de la surface des échantillons soumis au vieillissement électrique à l'aide d'un microscope électronique à balayage (environnemental) de marque phillips JOEL XL30 à filament de tungstène (Figure III.8) qui fonctionne à des tensions d'accélération du faisceau électronique que nous pouvons faire varier de 0.2 à 30 kV. Le principe de ce type de MEB évite l'accumulation de charges à la surface de l'isolant. Il permet d'observer des échantillons d'isolants sans préparation et adapté à l'étude des échantillons biologiques d'où l'appellation « environnemental ».

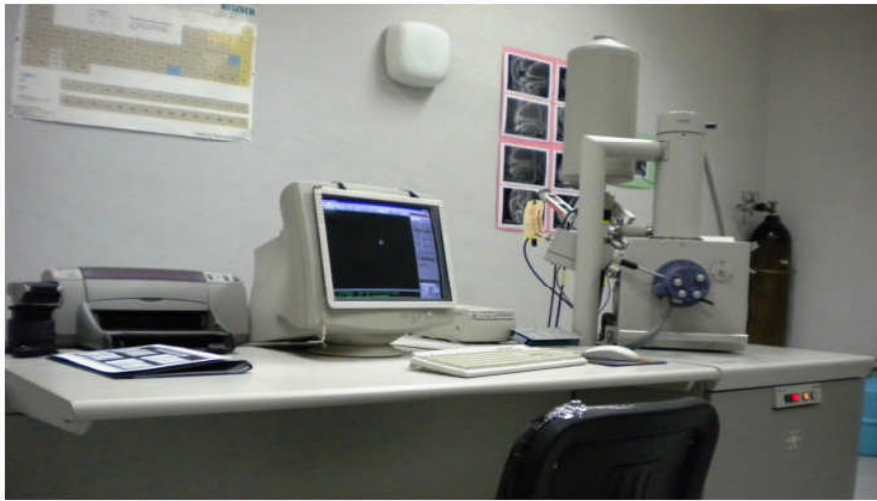


Figure III.8 : Photographie du microscope électronique à balayage ESEM XL 30 Phillips

III.6 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons passé en revue les différents dispositifs expérimentaux utilisés pour la caractérisation mécanique, diélectrique et physico-chimique du polyéthylène réticulé chimiquement soumis à un vieillissement électrique. La méthode utilisée pour le vieillissement électrique est aussi présentée.

Chapitre IV

Résultats et discussions

IV.1 Introduction

Ce chapitre sera consacré aux discussions des résultats expérimentaux obtenus pour nos divers essais effectués sur des éprouvettes du polyéthylène réticulé chimiquement soumis au vieillissement électrique. Ainsi, on fera une interprétation des différentes courbes obtenues.

IV.2 Caractérisation diélectriques

IV.2.1 Permittivité relative

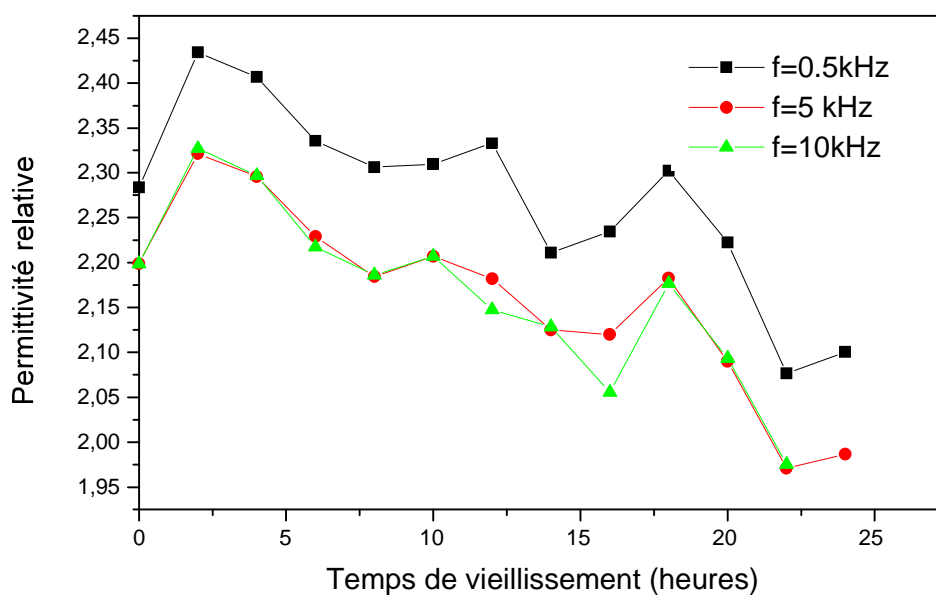


Figure IV.1(a) : Evolution de la permittivité relative en fonction du temps de vieillissement

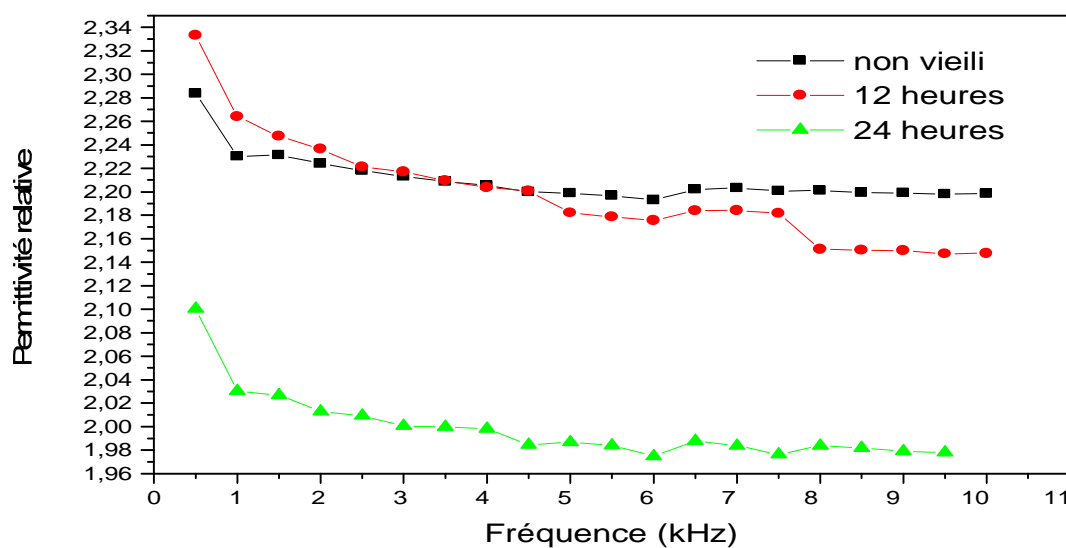


Figure IV.1(b) : Evolution de la permittivité relative en fonction de la fréquence

La figure VI.1(a) et VI.1(b) représentent respectivement l'évolution de la permittivité relative en fonction du temps de soumission à la contrainte électrique et de la fréquence. Nous constatons que l'évolution de la permittivité relative en fonction du temps de vieillissement n'est pas monotone et présente des fréquents pics. Ces pics seraient dus soit au phénomène de réticulation, soit aux coupures de chaînes.

Nous remarquons que pour les 3 différents temps de vieillissement, la permittivité relative diminue légèrement en augmentant la fréquence. Ceci peut s'expliquer par les phénomènes de polarisation (polarisation d'orientation ou de Debye). En effet, pour des basses fréquences la polarisation suit le champ électrique, ce qui induit une valeur élevée de permittivité et lorsque la fréquence croît, les contributions apportées par la polarisation disparaissent, la permittivité décroît donc avec la fréquence.

IV.2.2 Facteur de dissipation ($\text{tg}\delta$)

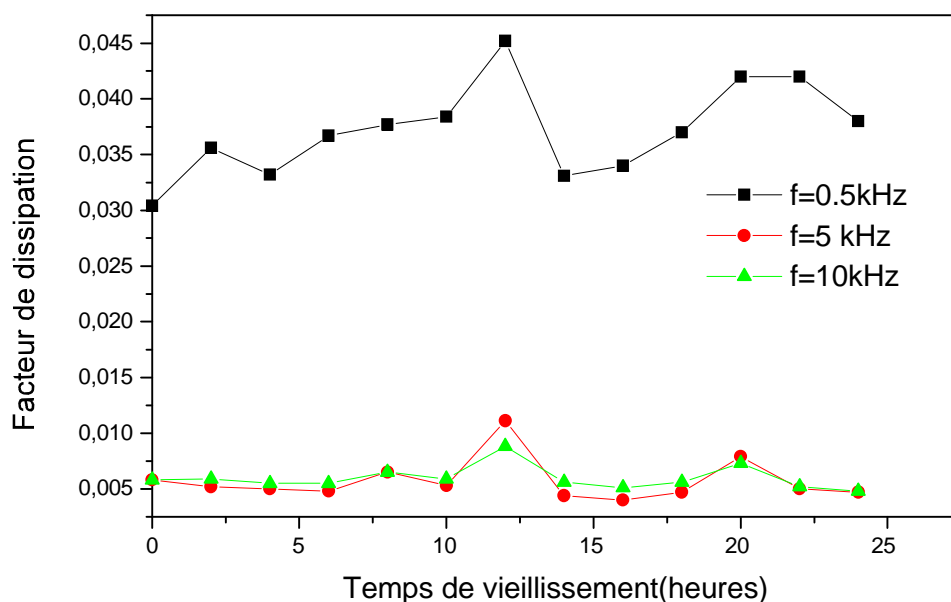


Figure IV.2(a) : Evolution du facteur de dissipation en fonction du temps de vieillissement

La figure IV.2(a) représente l'évolution du facteur de dissipation en fonction du temps de vieillissement. L'évolution n'est pas monotone. Ceci peut être attribué au phénomène d'oxydation.

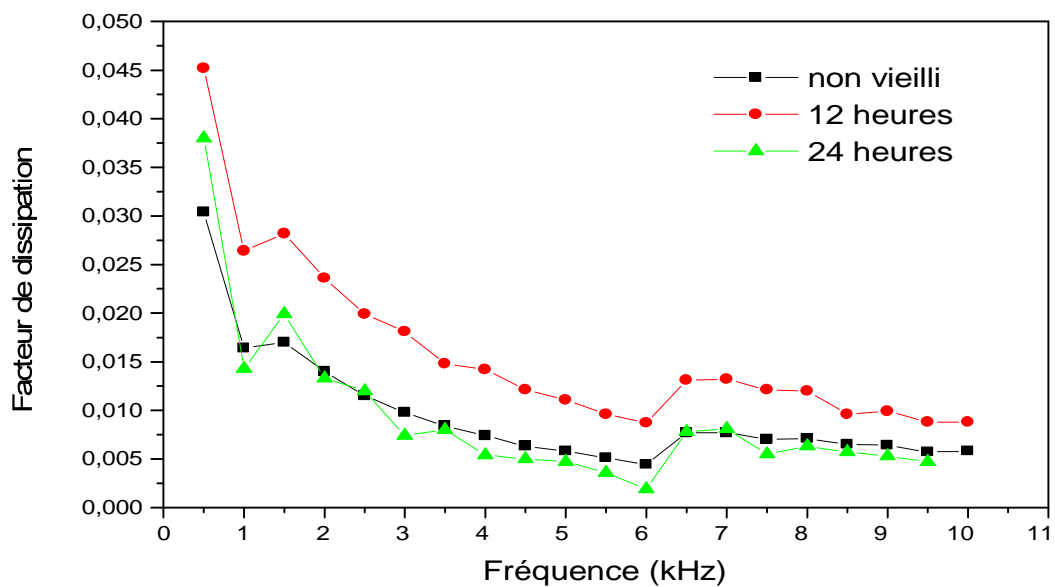


Figure VI.2(b) : Evolution du facteur de dissipation en fonction de la fréquence

La diminution du facteur de dissipation avec l'augmentation de la fréquence peut s'expliquer par la disparition du phénomène de polarisation, et donc la diminution de la conductivité électrique et du facteur de dissipation.

IV.2.3 Indice de pertes diélectriques

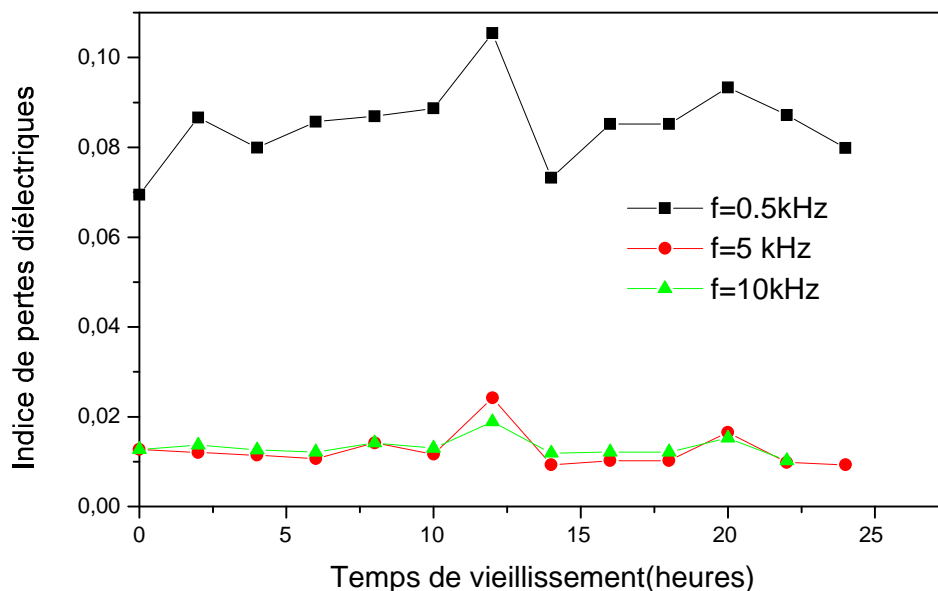


Figure VI.3 (a) : Evolution de l'indice de pertes diélectriques en fonction du temps de vieillissement

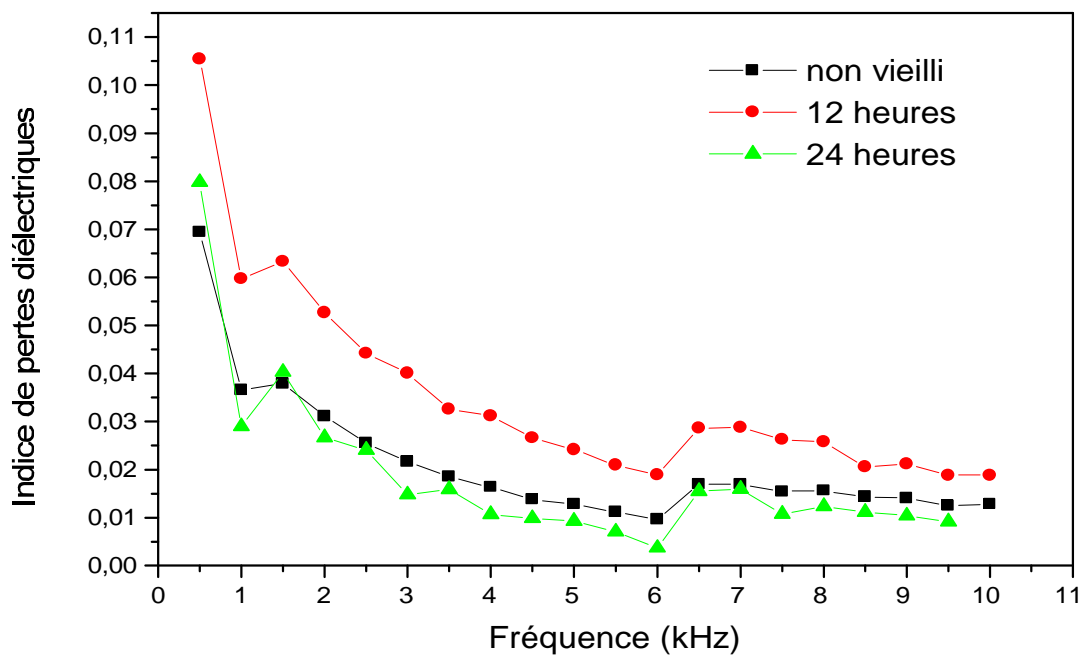


Figure VI.3 (b) : Evolution de l'indice de pertes diélectriques en fonction de la fréquence

La figure VI.3(a) et VI.3 (b) représentent respectivement l'évolution de l'indice de pertes diélectriques en fonction du temps de vieillissement et de la fréquence. Les différentes courbes présentent quasiment la même allure que celles pour le facteur de dissipation. Les évolutions de ce paramètre peuvent être interpréter de la même façon. La valeur maximale de ϵ'' pour une fréquence f_m est liée au temps de relaxation.

IV.2.4 Résistivité volumique en AC

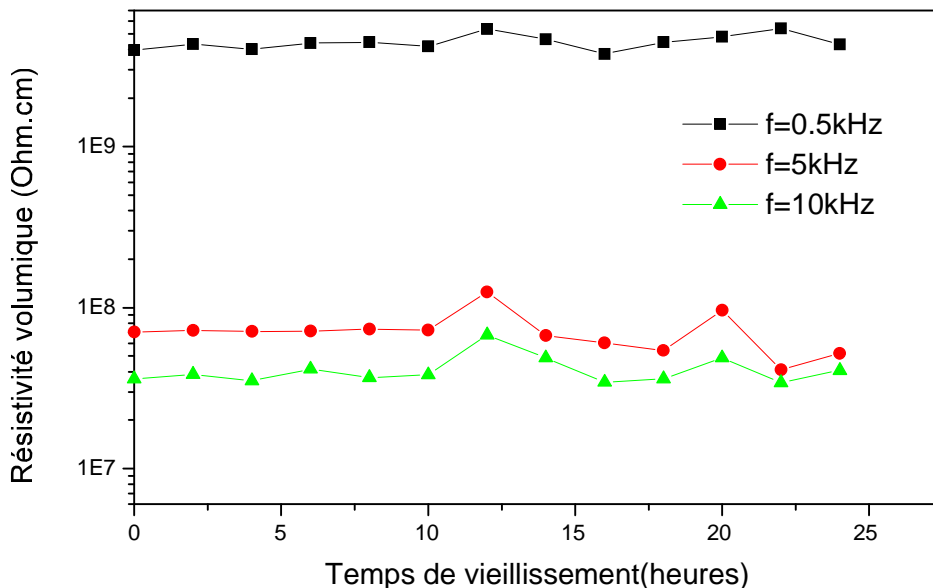


Figure VI.4(a) : Evolution de la résistivité volumique en fonction du temps du vieillissement

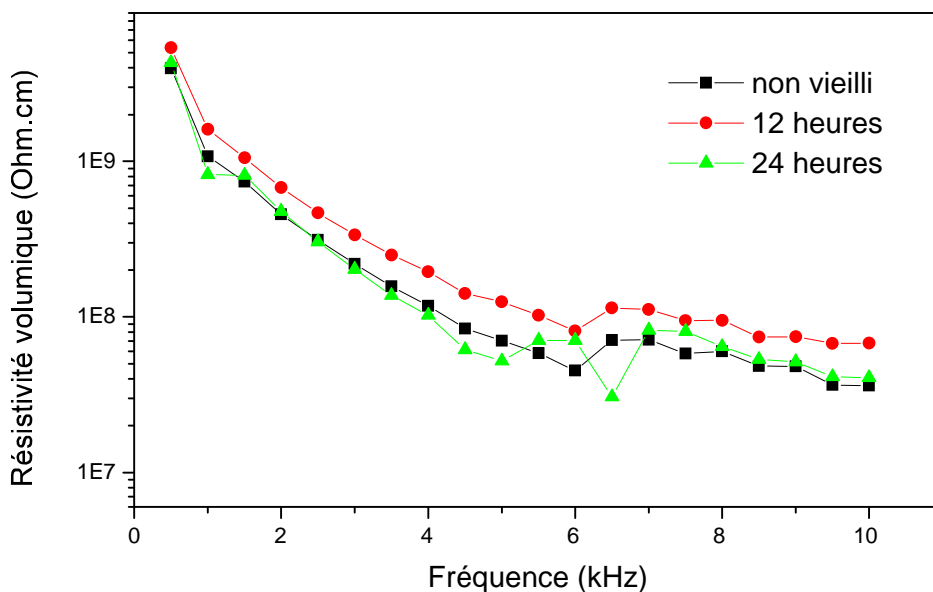


Figure VI.4(b) : Evolution de la résistivité volumique en fonction de la fréquence

Les figures VI.4(a) et VI.4(b) représentent respectivement l'évolution de la résistivité volumique en fonction du temps de vieillissement et de la fréquence. On constate que le vieillissement électrique entraîne une diminution de la résistivité volumique des polymères. Cette décroissance est probablement due à la conduction ionique, ainsi que l'injection des porteurs de charges par les électrodes. Cette diminution peut être attribuée aussi à la décroissance de la cristallinité du polymère.

IV.3 Caractérisation mécaniques

IV.3.1 Allongement à la rupture

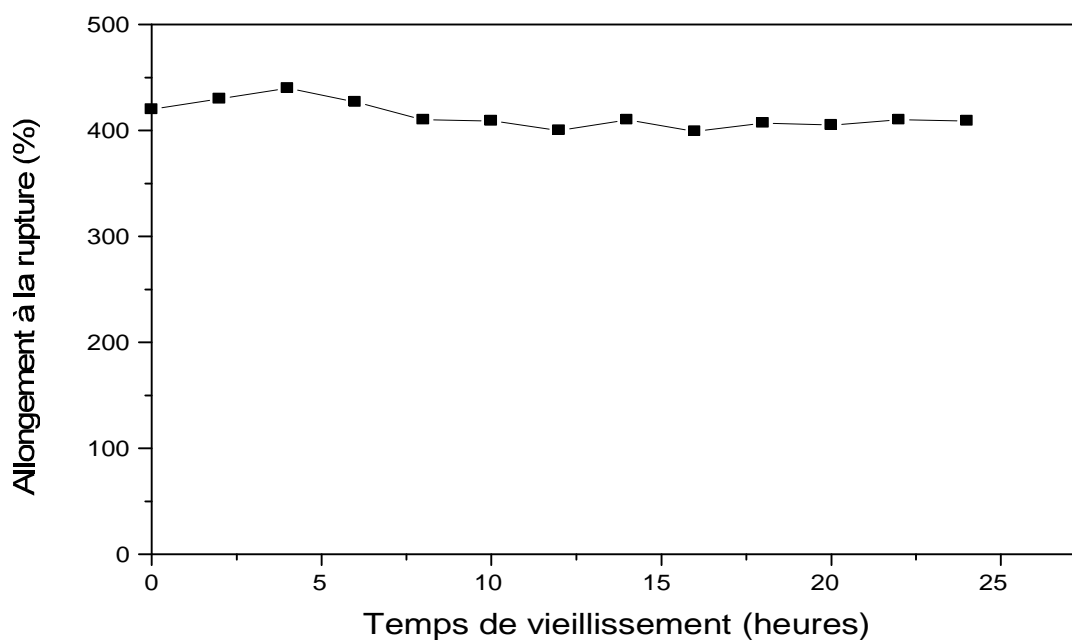


Figure VI.5 : Evolution de l'allongement à la rupture en fonction du temps de vieillissement

IV.3.2 Résistance à la traction

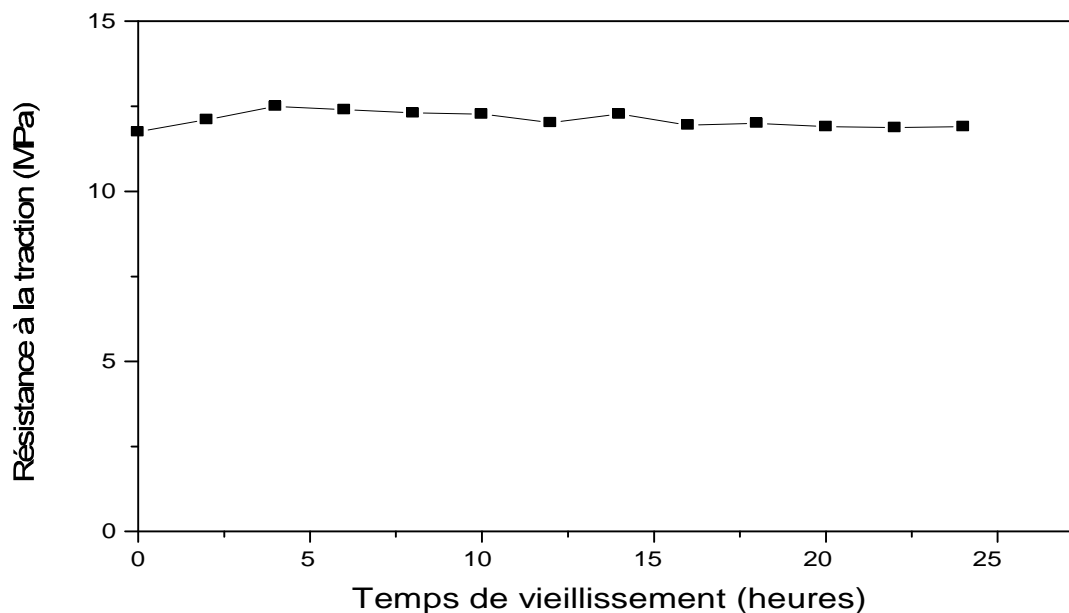


Figure VI.6 : Evolution de la résistance à la traction en fonction du temps de vieillissement

Les figures VI.5 et VI.6 montrent respectivement l'évolution de l'allongement à la rupture et de la résistance à la traction en fonction du temps du vieillissement sous champ électrique. Comme on peut le remarquer sur ces figures, la variation de ces deux paramètres est légère.

L'allongement à la rupture est passé de 423% à 400% après 12h de vieillissement électrique et atteint 409% à la fin d'allégeance à la contrainte électrique.

La résistance à la traction quant à elle, elle augmente de 11.77 MPa à 12.02 MPa au bout de 12h et à 11.9 à la fin du vieillissement électrique. La réduction des propriétés mécaniques serait due aux coupures de chaînes qui provoquent à la fois la diminution de la zone amorphe et de la masse moléculaire, ce qui conduit à la fragilisation du matériau. L'augmentation constatée pour l'allongement à la rupture est attribué au phénomène de réticulation. Par contre la diminution est attribuée aux coupures de chaînes. [40]

VI.3.2 Dureté de surface

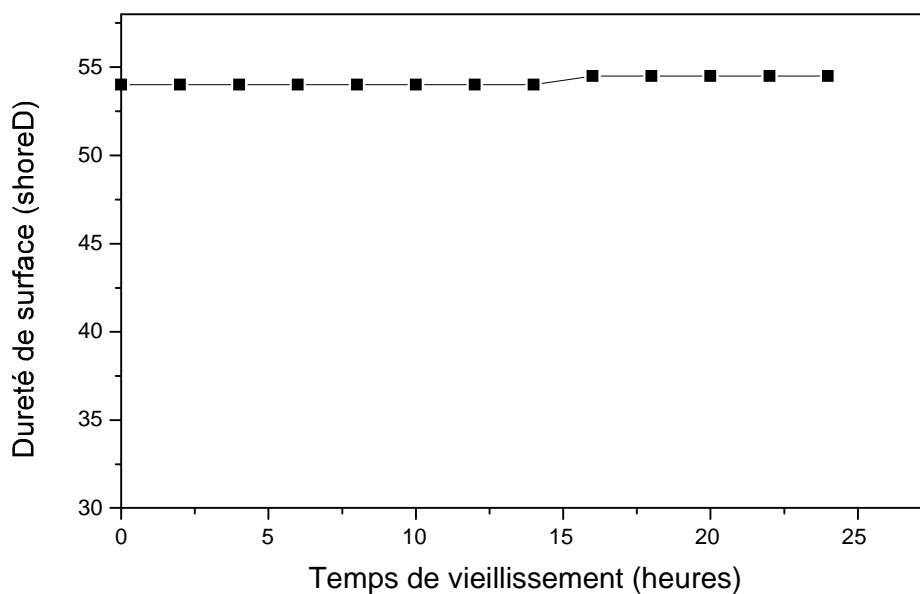
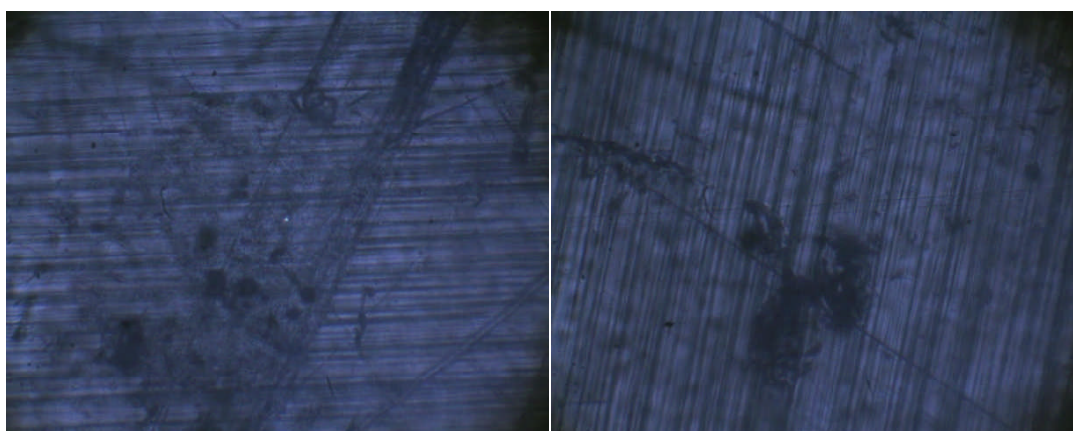


Figure IV.7: Evolution de la dureté de surface en fonction du temps de vieillissement

La figure IV.7 représente l'évolution de la dureté de surface en fonction du temps de vieillissement. On constate que l'évolution est légère. Au bout de 16h de vieillissement, elle passe de 54 shD à 54,5 shD. Elle reste constante après cette durée.

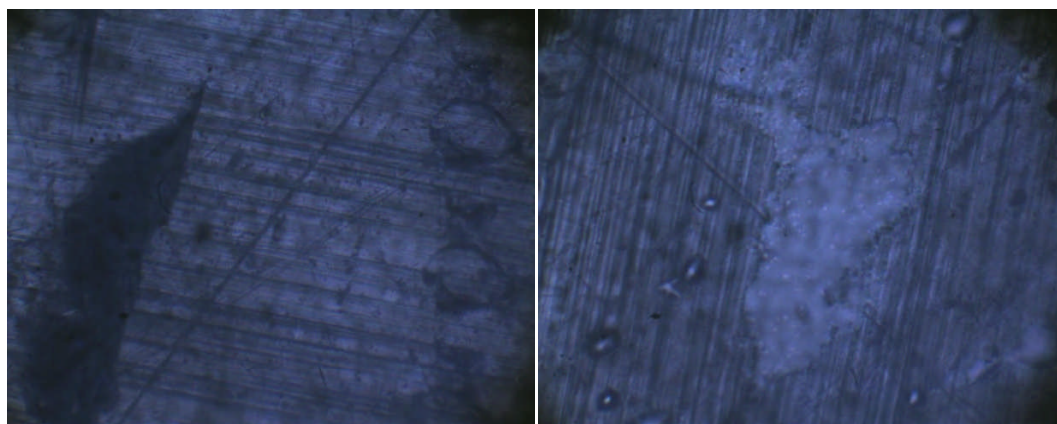
IV.4 Propriétés physico-chimiques

IV.4.1 Microscopie Optique



a)

b)



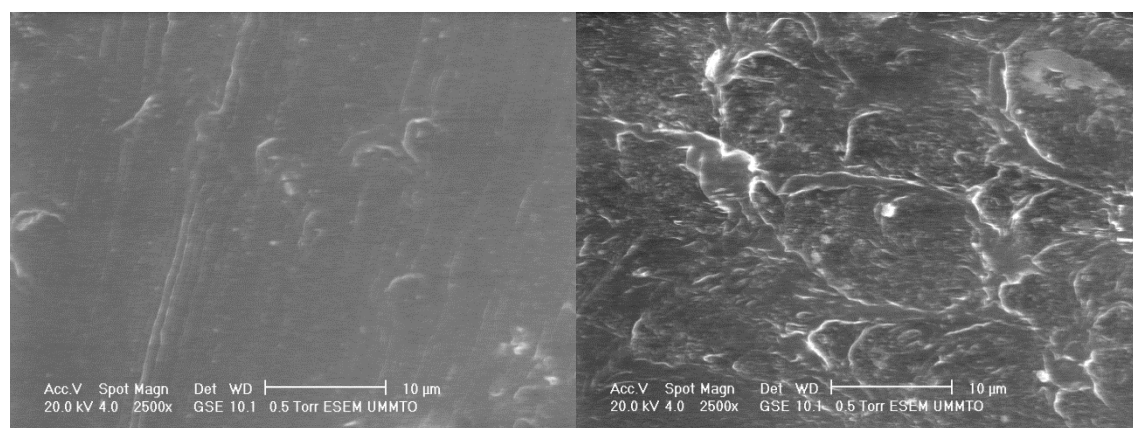
c)

d)

Figure IV.8 : Microscopie optique d'échantillons vieillis électriquement : (a) vierge, (b) pendant 8h, (c) pendant 16h et (d) pendant 24h

La figure **VI.8** représente des images d'échantillons vierge et vieilli sous champ électrique pendant trois périodes différentes. On constate un changement d'apparence sur l'aspect de la surface des échantillons. Un changement de couleur aussi est observé. La surface de l'échantillon vierge présente des défauts de fabrication. Au bout de 24h de vieillissement, des cratères se sont formés à partir des défauts initiaux.

IV.4.2 Microscopie Electronique à Balayage (MEB)



(a)

(b)

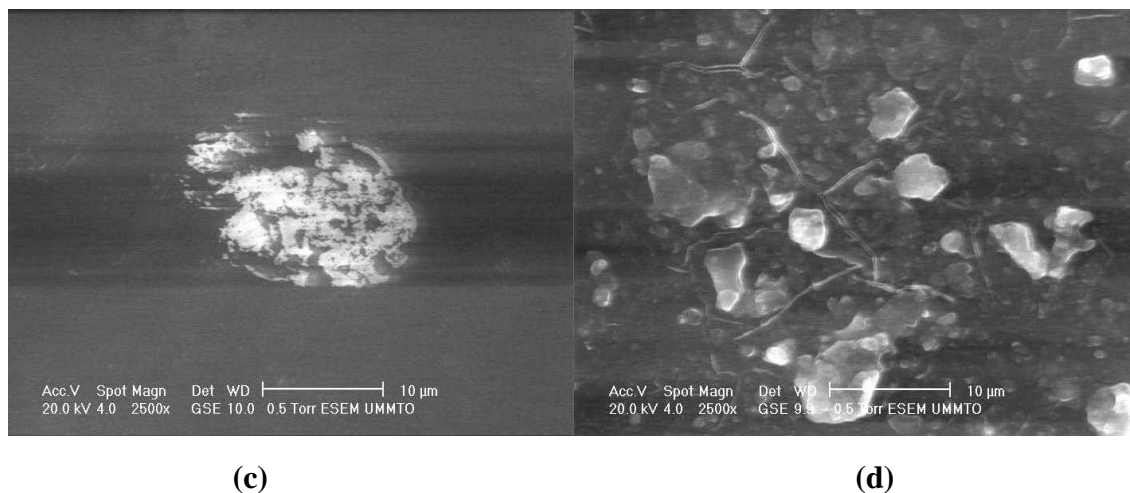


Figure IV.9 : Micrographie MEB d'échantillons vieillissés électriquement : (a) vierge, (b) pendant 8h, (c) pendant 16h et (d) pendant 24h

La figure **IV.9** représente des microphotographies de surface du polyéthylène réticulé chimiquement vierge et vieilli électriquement. On constate que l'aspect de la surface évolue et change durant toutes les durées de vieillissement. L'échantillon vierge présente une surface lisse et homogène. Elle devient moins homogène et plus rugueuse après 8h et 16h de vieillissement. Au bout de 24h, la dégradation est un peu plus prononcée. Comme on peut l'observer sur la microphotographie, des cratères se sont formés.

IV.5 Conclusion

Ce chapitre s'est porté sur l'interprétation des courbes obtenues à partir des résultats des différents essais effectués. La caractérisation diélectrique a montré que la permittivité relative, facteur de pertes, indices de pertes et la résistivité volumique diminuent avec l'augmentation de la durée de vieillissement et de la fréquence. La caractérisation physico-chimique a révélé l'influence du champ électrique sur la morphologie du PRC. Les microphotographies ont montré une importante dégradation de la surface du matériau

Conclusion générale

Conclusion générale

Notre travail a consisté à étudier l'influence du champ électrique sur les propriétés diélectriques, mécaniques et physico-chimiques du polyéthylène réticulé chimiquement (PRC), afin de comprendre les mécanismes de dégradation électrique de ce matériau utilisé dans les isolations de haute tension. Pour cela, plusieurs techniques expérimentales ont été utilisées. Les différentes caractérisations effectuées sur le PRC vieilli sous contrainte électrique ont conduit aux résultats suivant :

- La caractérisation diélectrique nous a montré que la permittivité relative, le facteur de pertes, l'indice de perte ainsi que la résistivité volumique varient en fonction du temps de vieillissement et de la fréquence du champ appliqué. Ces paramètres diminuent légèrement avec l'augmentation de la fréquence et du temps du vieillissement.
- Le suivi de l'évolution des propriétés mécaniques ont montré que ces derniers sont peu affectés par la contrainte électrique. En effet, l'allongement à la rupture et la dureté de surface présentent de diminution légère.
- La microscopie optique et la microscopie électronique à balayage (MEB) ont par contre révélé que la morphologie du PRC subit des dégradations en fonction du temps de vieillissement. Ces altérations peuvent être corrélées aux évolutions des autres propriétés.

Le temps imparti aux essais étant très court, il ne nous a pas été possible d'obtenir des résultats à même de constater de visu l'effet du champ électrique sur les propriétés du PRC.

Références bibliographiques

Bibliographie

- [1] **M.Moudoud** « Etude de la conduction électrique dans les polymères isolants » Thèse de Doctorat, UMMTO, 21/12/2010
- [2] **Séverine Le Roy** « Modélisation numérique des phénomènes de transport électrique dans un isolant polyéthylène sous contrainte électrique » Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier de Toulouse, Juin 2004
- [3] **M. Taleb** « Phénomènes aux interfaces des isolants : mesure et simulation », Thèse de Doctorat Université Paul Sabatier, 2011
- [4] **T. Tran Anh** « Corrélation entre les charges d'espace accumulées et les déformations mécaniques induites dans des isolants organiques solides soumis à un champ électrique » Thèse de Doctorat Université Paul Sabatier, 2011
- [5] **Dj. Bougueddad** « Influence du vieillissement thermique sur les propriétés de l'Ethylène Propylène Diène Monomère (EPDM) » Thèse de Doctorat, UMMTO, 2010
- [6] **L. Boukezzi** « Influence du vieillissement thermique sur les propriétés du polyéthylène réticulé chimiquement utilisé dans l'isolation des câbles de haute tension » Thèse de Doctorat, Ecole Nationale Polytechnique d'Alger, 2007
- [7] **M.Leda, M.Nagao, M.Nikita** « High Field Conduction and Breakdown in Insulating polymers » IEEE Transaction On Dielectric and Electrical Insulation. Vol 1 No.5, Oct 1994
- [8] **Safia Sahri** « Etude du Comportement Mécanique d'un Matériaux Composite Thermoplastique (PP)/ Verre : Effet de Différents Milieux » Magister, UMMTO, 2012
- [9] **C.D.Pham** « Cartographie de Charges d'espace Par Méthode FLIM/ Complémentarité avec les méthodes PEA et TPT » Thèse de Doctorat, Université Toulouse III, Paul Sabatier, 2009
- [10] **P.Robert** « Matériaux de l'Electrotechnique » Edition Géorgie, traité d'électricité, EPF Lausanne, 1982
- [11] **Dj. Bougueddad, A. Mekhaldi, A. Boubakeur, O. Jbara** « Thermal Ageing Effects On The Propeties Of Ethylene-Propylene-Diene Monomer (EPDM) »
- [12] **G.C. Montanari, DK Das-Gupta** « Polirization and Space Charge Behavior Of Unaged and Electrically aged crosslineked Polyethylene », IEEE Transactions On dielectrics and Electrical Insulation, Vol.7 No.4, August 2000

Bibliographie

- [13] **KM.Nair, AS. Bhalla, TK.Gupta, SI. Hirano** « Dielectric Materials and devices » The American Ceramic Society, USA, 2002, ISBN, 1.57498-118-8
- [14] **KC. Kao** « Dielectric Phenomena in solids » Elsevier Academic Press, USA, 2004
- [15] **E.Kuffel, WS. Zaengl, J.Kuffel** « High Voltage Engineering Fundamentals », Second Edition, Edition Newnes, 2000
- [16] **T.Pakula** « Dielectric Relaxation Modeling In Complex Polymer Systems », IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol.8 No.6, December 2001
- [17] **SCJ Meskers, C Im, H. Bassler, J. Hubner** « Relaxation Of Excitons and Charge Carriers In Polymers » IEEE Transaction On Dielectrics and Electrical Insulation, Vol.8 No.3, June 2001
- [18] **G.Williams**, « Dielectric Relaxation Behaviour Of Amorphous Polymers And Related Materials » IEEE Transaction On Dielectrics and Electrical Insulation, Vol.EI-20 No.5, October 1985
- [19] **V.Daniel**, « Dielectric Relaxation » Academic Press, London and New York, 1967
- [20] **DK. Das-Gupta, PCN. Scarpa** « Modeling of Dielectric Relaxation Spectra Of Polymers In The Condensed Phase » IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol.15 No.2, 1999
- [21] **KS. Cole, RH. Cole** « Dispersion and absorption in dielectrics in I.Alternating current characteristics » The Journal Of Chemical Physics, Vol.9, No.4, PP.341-351, 1941
- [22] **DW. Davidson, RH. Cole** « Dielectric Relaxation in Glycol Propylene glycol and n propylene » The Journal Oof Chemical Physics, Vol.19, No.12, PP-1484-1490, 1951
- [23] **S. Havriliak, S.Negami**, « A complex Plane Analysis Of Dispersion In Some Polymer Systems » Journal Of Polymer Science Part C, Vol.14, PP.99-117, 1966
- [24] **D.Ausseur** « Polychlorure de vinyle » Techniques de l'ingénieur, traité plastique et composite Doc AM 3325.1118, 1998
- [25] **Gottfried W. Ehrenstein, Fabienne Montagne** « Matériaux Polymères : Structure, propriétés et application »
- [26] **Juan Martinez-Vega** « Matériaux diélectriques pour le génie électrique 1 : propriétés, vieillissement et modélisation »

Bibliographie

- [27] **N. Lahoud** « Modélisation du vieillissement des isolants organiques sous contrainte électrique application à la fiabilité des matériaux » Thèse de Doctorat, 2009
- [28] **E. Robert** « Diagnostic Optique du vieillissement électrique des résines époxydes sous faible champs électrique » Thèse de Doctorat, Paul Sabatier, 2008
- [29] **L.A. Dissado, G. Mazzanti, G.C. Montanari**, « The incorporation of space charge degradation in the life model for electrical insulating materials » IEEE Transactions on Dielectric and Electrical Insulation, Vol.2, PP.1147-1158, 1995
- [30] **C. Laurent** « Diélectriques solides et charges d'espace » Traité de génie électrique-Techniques de l'ingénieur, Vol.D2, PP.305-13, 1998
- [31] **G.Krause, K.Moller, D.Meurer**, « Dielectric Phenomena in Semi Crystalline Polymers », IEEE Transactions On Electrical Insulation, Vol.24 No.2, April 1989
- [32] **G.C. Montanari, G. Mazzanti, L.A. Dissado** « Space-charge life Model for AC electrical aging of Polymers », Vol 4(5), PP.1147-1158, 1995
- [33] **E.Belhiteche** « Etude de la dégradation d'un isolant solide soumis à une décharge électrique de surface » Magister, 2012
- [34] **Elyse Sili** « Etude et caractérisation des décharges partielles et du vieillissement du polyimide en environnement aéronautique », Thèse de Doctorat, 2012
- [35] **A. Melo Nobrega, M. Luis Barreira Martinez, A.A Alencar de Queiroz**, « Investigation and Analysis of Electrical Aging of XLPE Insulation for Medium Voltage Covered Conductors Manufactured in Brazil », IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation Vol.20, No.2, PP.1070-9878, 2013
- [36] **CEI 60811.1.1**, « Méthodes d'essais communes pour les matériaux d'isolation et de gainage des câbles électriques. 1^{ère} partie : méthodes d'application générale. Section 1 : mesure des épaisseurs et des dimensions extérieures. Détermination des propriétés mécaniques », 1993
- [37] **D.K. Das-Gupta, PCN. Scarpa** « Polarization and dielectric behavior of ac-aged Polyethelene » IEEE Transactions on Dielectric and Electrical Insulation, Vo.23 No.3, June 1996

Bibliographie

- [38] **A.Boubaker** « Vieillissement thermique du polyéthylène réticulé chimiquement PRC utilisé dans l'isolation des câbles produits par ENICABISKRA »
- [39] **CEI 540** « Méthodes d'essais pour les enveloppes isolantes et les gaines des câbles électriques rigide et souples (Mélange élastomères et thermoplastiques », Edition 1983
- [40] **P. Luo, Y. Xu, X. Gu, Y. Lao, J. Cui, Z. Lu, Z. Ren**, “Thermal and mechanical properties analysis for EHV XLPE cables with different operating years, 2013 Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena”, Shenzhen, Oct. 2013