

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR
ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE
UNIVERSITE FERHAT ABBAS -SETIF 1
UFAS(ALGERIE)

THESE

Présentée à la Faculté de Technologie

Département d'électrotechnique

Pour l'Obtention du Diplôme de

DOCTORAT EN SCIENCES

Option : Machines électriques et leurs commandes

Par

M. LAKHDAR MADANI

THEME

*Etude du comportement diélectrique des isolateurs en
composite*

Soutenu le / / 2016 devant un Jury composé de :

M. Ahmed Kharmouche	Prof. à l'Université de Sétif	Président
M. Saad Belkhiat	Prof. à l'Université de Sétif	Rapporteur
M. Sourî Mohammed Mimoune	Prof. à l'Université de Biskra	Examineur
M. Lotfi Alloui	Prof. à l'Université de Biskra	Examineur
M. Sabir Messalti	M.C.A. à l'Université de M'sila	Examineur
M. Nouri Hamou	M.C.A. à l'Université de Sétif	Examineur

Résumé

Les polymères sont des matériaux très utilisés comme isolant dans le réseau de transport et de distribution de l'électricité particulièrement comme gaine de câble et isolateur. Seulement, ces matériaux à l'état pur présentent certains inconvénients tels que les charges d'espaces dues aux défauts et par conséquent la distorsion du champ électrique. Pour améliorer leurs propriétés diélectriques, ils sont chargés aux céramiques. Nous étudions dans cette thèse le vieillissement dans un environnement humide et chaud (proche de l'environnement réel des câbles et des isolateurs) des composites de PVC et de PRC chargé au BaTiO₃. Les produits (grains) de base PVC et PRC (récupéré de l'UNICAB Biskra) sont chargés à 5%, 10%, 15% et 20%at. BaTiO₃. Des échantillons ont été élaborés et analysés après avoir été soumis à l'humidité et aux contraintes thermiques. Différentes méthodes de caractérisations telles que le MEB combiné à l'EDS, la diffraction des rayons X et la Spectroscopie Infra rouge ont été utilisés. Les propriétés diélectriques ont été étudiées. L'analyseur d'impédance RLC (type WAYNE KERR 6420) dans la plage des fréquences (de 20Hz à 300Hz) nous a permis de mesurer le facteur de perte $\text{tg}\delta$, la permittivité diélectrique ϵ_r et l'indice de perte. Les résultats obtenus sont satisfaisants puisque les propriétés diélectriques sont améliorées. Des testes de simulation ont été effectués sur ces échantillons dans l'environnement Comsol-multiphysics, les résultats sont comparables avec ceux d'autres chercheurs.

Mots-clés: Polymères composite, PVC/BaTiO₃, RPC/ BaTiO₃, vieillissement thermique, absorption d'eau, caractérisations MEB, DRX et IFR, distribution du champ électrique, arc électrique, ϵ_r , $\text{tg}\delta$.

Abstract

Abstract

Polymers are widely used as insulating materials in the transport network and electricity distribution especially as a cable sheath and insulator. Only these materials in the pure state have certain disadvantages such as the space charge due to defects and therefore the distortion of the electric field. In order to improve the dielectric properties susceptible to be modified under the effects of thermal aging and water in an absorption environment, polymers are mixed with ceramics. In this paper, the influence of barium titanate (BaTiO₃), on the dielectric properties of XLPE has been studied. Dielectric parameters have been measured using an impedance analyzer RLC (WAYNE KERR 6420 type). Fourier transform infrared (FTIR) spectroscopy, scanning electron microscopy and X-ray diffraction were used as characterization techniques. The study has been carried out on two samples of XLPE. A pure sample of each were studied as a unloaded samples to be compared with samples of 5%wt, 10%wt, 15%wt and 20%wt. BaTiO₃ loaded XLPE. Afterwards, the composites were subject to humidity and to thermal aging. The incorporation of BaTiO₃ 1°C does not modify the crystallinity and morphology of the XLPE and 2°C reduces the space charges therefore the dielectric losses. $\text{tg}\delta$, ϵ_r and loss index are measured. Frequency response analysis has been followed in the frequency range (20–300 Hz). Experimental results show well that BaTiO₃ as nano-filler improves the dielectric properties of XLPE but in excessive content can drive to the cracking and therefore to absorption of water. Simulation results are in agreement with that found in the literature.

Keywords: Composite Polymers, PVC / BaTiO₃, XPLE/ BaTiO₃, thermal aging; water absorption, Dielectric parameters, characterization techniques (SEM, XRD and IFR), the electric field distribution, electrical arc, electric.

ملخص

يتم دراسة الخصائص العازلة للمواد المركبة (PVC/PRC-BaTiO₃) تحت تأثير الرطوبة وتحلل الحراري على التوالي. لقد تم إعداد عينات المواد المركبة بالطرق العادية. حيث يتوزع مسحوق (BaTiO₃) في مصفوفة البوليمر بتركيزات مختلفة. يتم قياس معاملات العازل العينات مثل السماحية النسبية، عامل فقدان والخسائر عازلة باستخدام المحلل من نوع (WAYNE KERR 6420) في مجال التردد بين (٢٠ هرتز- ٣٠٠ هرتز). المقارنة بين النتائج قبل وبعد تطبيق إجهاد، وكذلك التقنيات التصوير الإلكتروني و بالأشعة تحت الحمراء والأشعة السينية قد استخدمت في هذه الدراسة .

النتائج المحصل عليها كانت مرضية حيث تم تحسين خصائص العازلة للبوليمرات بإضافة نسبة معينة من (BaTiO₃) . علاوة على ذلك قدم البحث نموذج رياضي يبين ظاهرة القوس الكهربائي على سطح العازلة، هذا النموذج يوضح بالتفصيل تأثير نوع المادة على القوس الكهربائي الجزئي، وعلى التيارات الكهربائية الضائعة. أظهرت نتائج المحاكاة في هذا العمل بالمقارنة بنتائج بحوث التجريبية والنظرية أخرى تقارب جيد.

الكلمات الرئيسية :

البوليمرات المركبة، بولي كلوريد الفينيل، الشبخوخة الحرارية. امتصاص الرطوبة ، معاملات العزل، تقنيات الوصف والتصوير، نموذج مماثل للعوازل، توزيع الحقل الكهربائي، قوس الجزئي.

Remerciements

Les travaux de recherche présentés dans cette thèse ont été réalisés au sein des laboratoires :

- Laboratoires Dosage Analyse et Caractérisation à Haute Résolution (DACHR), université Sétif I.
- Laboratoire d'électrochimie des matériaux moléculaires et des complexes (LEMMC), université Sétif I.
- Laboratoire de Physico-chimie des hautes polymères (LPCHP) université Sétif I.
- Laboratoire des matériaux non métalliques (LMNM) université Sétif 1.

Je remercie Dieu pour m'avoir donné le courage et la force pour terminer ce travail.

J'adresse mes sincères remerciements à mon directeur de thèse, Saâd Belkhiat, Professeur à l'université Ferhat Abbas, Sétif I, Algérie, pour les sages orientations qu'il m'a donné tout au long de ce travail. Pour l'intérêt et l'attention qu'il a continué à prêter à mes recherches. Ses encouragements ont contribué à l'aboutissement de cette thèse. Je garderai aussi en mémoire l'humanité qui le caractérise et dont il a fait preuve à mon égard durant ces années.

Je tiens à remercier, Mr. Ahmed Kharmouche Professeur et Doyen de la Faculté de Technologie à l'université Ferhat Abbas, Sétif d'avoir accepté la présidence du jury.

J'exprime également ma profonde reconnaissance au Pr Sourî Mohammed Mimoune, Pr Lotfi Alloui, Dr Sabir Messalti, et Dr Nouri Hamou de m'avoir fait le plaisir de s'intéresser à mes travaux en acceptant de faire partie du Jury de thèse.

Je remercie particulièrement Pr S.Chafaa directeur du laboratoire (LEMMC), Pr. N. HADDAOUI directeur du laboratoire (LPCHP), Pr K. Loucif chercheur associé au laboratoire (LMNM), Pr M. BOUDISSA et Madame M. Hamici directeur et membre au laboratoire (DACHR) respectivement pour leurs aides, conseils lucides et pertinents au sien de leurs laboratoires.

Je voudrais également remercier Mr B.Bensassi directeur technique de la société ENICAB, Biskra, qui m'a fourni des échantillons de grains de PRC pour mes testes.

Je remercie aussi chaleureusement Dr Kharchouche Faïçal, Dr Nemdili Saad, Mr Nouar Yacine, Mr Berreg amine, Mr boukhrissa Walid, Mr Sekhiri Ilyas, madame Rechidi Souâd, M^{elle} Boudjemaâ Fouzia et M^{elle} Boudrifa Wassila et tous les membres de laboratoire de génie des polymères université Sétif 1 pour leurs conseils et l'aide qu'ils m'ont apportés tout au long de ma thèse.

Une thèse n'est pas seulement l'occasion de se former à la recherche, c'est aussi pouvoir

rencontrer des personnes formidables. Je remercie également tous les amis et collègues ayant de près ou de loin encouragé ou contribué à la réalisation de cette thèse.

J'exprime singulièrement mes chaleureux remerciements à toute ma famille, spécialement ma mère et mon frère Salim, pour leurs soutiens moraux et financier, pour la confiance qu'elle m'a accordée et pour les prières qu'elle n'a cessé de dédier à mon rencontre.

Enfin, nombreuses sont les personnes que je voudrais remercier pour leur aide scientifique, morale et leur amitié, et que j'ai peut être oublié, que celles-ci me le pardonnent, il n'y a que Dieu tout puissant qui n'oublie aucune chose.

Table des matières

Introduction Générale

CHAPITRE I. Généralité et état de l'art sur les matériaux polymères utilisés pour l'isolation électrique.

1.1	Introduction:	1
1.2	Problématique:	2
1.3	Structure et morphologie des polymères:	2
1.3.1	Structure chimique d'un polymère:	2
1.3.1.1	Additifs:	3
1.3.2	Structure physique d'un polymère:	4
1.4	Les polymères composites:	5
1.5	Matériaux composites polymère/charge céramique ou métallique:	5
1.6	Réponse en fréquence des matériaux diélectriques (Mécanismes de polarisation):	6
1.7	Dégradation de l'isolant:	8
1.7.1	Mécanismes de claquage:	8
1.7.2	Lois de vieillissement:	9
1.7.2.1	Loi de vieillissement thermique:	9
1.7.2.2	Lois de vieillissement électrique:	10
1.7.2.3	Lois de vieillissement électro-thermique:	10
1.7.3	Etudes des charges d'espace:	11
1.7.4	Effet des charges d'espace sur le comportement des isolants:	12
1.7.5	Rôle des charges d'espace selon les modèles de vieillissement:	14
1.8	Régimes de conduction:	15
1.8.1	Courant ohmique:	15
1.8.2	Mécanisme Poole-Frenkel:	15
1.8.3	Modèle de la conduction par saut (ionique):	16
1.8.4	Courant limité par charges d'espace (SCLC):	17
1.9	Décharges partielles:	18
1.9.1	Caractérisation des décharges partielles:	19
1.9.1.1	Décharges surfaciques:	19
1.10	Phénomènes d'interface:	20
1.10.1	Charges surfaciques:	21
1.10.1.2	Accumulation des charges surfaciques:	21
1.10.1.3	Charges surfaciques et champ électrique:	21
1.10.2	Distorsion du champ électrique:	23
1.10.3	Influence de la surface diélectrique sur l'initiation et la propagation des streamers:	25
1.11	Les isolateurs composites:	26
1.11.1	Noyau:	27
1.11.2	Revêtement (jupe):	27
1.11.3	Les extrémités métalliques:	27
1.12	Les câbles électriques:	27

	Références bibliographiques chapitre I:	29
	<u>CHAPITRE II : Modélisation et Techniques Expérimentales.</u>	
II.1	Introduction:	34
	<i>Partie A : Techniques Expérimentales :</i>	
II.2	Matière première:	34
II.2.1	Le polyéthylène réticulé chimiquement (PRC):	34
II.2.1.1	Mise en œuvre du PRC:	34
II.2.1.2	Avantages et inconvénients de l'isolation en PRC:	35
II.2.2	Le Polychlorure de vinyle (PVC):	35
II.2.2.1	Formulation et mise en œuvre du PVC:	35
II.2.3	Comparaison des propriétés électriques des polymères:	36
II.2.4	L'oxyde de titanate de baryum (BaTiO ₃):	37
II.3	Mise en œuvre expérimentale:	37
II.3.1	Préparation des échantillons de PVC:	37
II.3.2	Préparation des échantillons de PRC:	39
II.3.3	Vieillessement des échantillons sous contrainte thermique:	40
II.3.4	Vieillessement des échantillons sous la contrainte d'humidité:	40
II.4	Mesure par impédance mètre:	40
II.5	Techniques de caractérisation:	43
II.5.1	Diffraction des rayons X:	43
II.5.2	IFR:	45
II.5.3	Microscopie électronique à balayage:	47
	<i>Partie B : Modélisation :</i>	
II.6	Principaux modèles:	49
II.7	Modèle d'Obenaus:	50
II.8	Mécanisme de propagation:	51
II.8.1	Propagation par ionisation:	51
II.8.2	Propagation par force électrostatique:	52
II.8.3	Critères de propagation de la décharge:	52
II.9	Modèle d'Obenaus modifié:	53
II.9.1	Modèle physique de simulation:	54
II.9.2	Modèle Mathématique:	55
II.10	Conclusion:	59
	Références bibliographiques chapitre II:	60
	<u>CHAPITRE III : Résultats et analyse</u>	
	<i>Partie A : Résultats Expérimentaux:</i>	
III.1	Effet de l'eau sur le composite:	62
III.2	Effet de BaTiO ₃ sur la permittivité:	63
III.3	Effet de BaTiO ₃ sur le facteur de perte:	66
III.4	Effet du BaTiO ₃ sur les pertes:	69
III.5	Analyse micro-structurale des échantillons:	71
III.5.1	Caractérisation par spectroscopie infrarouge:	71
III.5.2	Caractérisation par microscopie électronique à balayage:	73

III.5.3	Analyse par DRX:	74
III.6	Discussion:	76
<i>Partie B: Résultats de simulation :</i>		
III.7	Influence du materiau sur le champ électrique:	83
III.8	Influence du materiau sur la distribution de la charge électrique:	85
III.9	Courant électrique circulant dans le matériau:	87
III.9.1	Courant de décharge en fonction du temps:	87
III.9.2	Effet de l'onde impulsionnelle:	88
III.10	Discussion:	89
III.11	Conclusions:	90
	Références bibliographiques chapitre III:	92

Conclusions Générales et Perspectives

Liste des figures

Figure I.1 : Position des atomes de carbone dans une chaîne moléculaire.

Figure I.2 : Mécanismes de polarisation et évolution de ϵ'' et ϵ' en fonction de la fréquence.

Figure I.3: Exemple d'arborescence.

Figure I.4: Représentation de la durée de vie d'un isolant avec une valeur seuil de la contrainte électrique.

Figure I.5: Charges d'espace et distorsion du champ électrique.

Figure I.6: Diagramme d'énergie .

Figure I.7: Modification d'un piège énergétique par l'application d'un champ électrique.

Figure I.8: Conduction par saut : représentation des hauteurs de barrière.

Figure I.9: Caractéristique courant –tension pour un mécanisme de conduction limité par charge d'espace .

Figure I.10 : Différents types de décharges partielles selon Kreuger .

Figure I.11 : Configuration de décharges de surface.

Figure I.12 : Interface solide/gaz soumis à un champ électrique.

Figure I.13 : Distribution du champ électrique dans l'espace inter électrode en présence d'un diélectrique .

Figure I.14 : Comparaison du champ électrique autour de l'électrode haute tension dans l'air et en présence de surface diélectrique.

Figure I.15 : Processus fondamentaux contribuant aux phénomènes d'ionisation et d'attachement dans la propagation d'un streamer à travers une surface diélectrique.

Figure I.16 : Coefficients d'ionisation et d'attachement de l'air respectivement α_0 et η_0 (traits en pointillés) et ceux favorisés par la présence d'une surface en PVC (traits continus).

Figure I.17 : Les composante de l'isolateur en composite.

Figure I.18 : Les composante d'un cable électrique MT.

Figure II-1 : Molécule du PRC.

Figure II-2 : Molécule de polychlorure de vinyle (PVC).

Figure II-3 : Polymérisation du PVC.

Figure II.4 : Structure de $BaTiO_3$.

Figure II.5: Mélangeur à 2 cylindres (Rodolfo Comercio) 1977.

Figure II.6 : Films de PVC vierge et chargé avec du $BaTiO_3$.

Figure II.7: Les grains de PRC.

Figure II.8: Films de PRC vierge et avec BaTiO₃.

Figure II.9 : Presse utilisée pour la préparation des films de PRC.

Figure II.10 : Impédance mètre (WAYNE KERR 6420) .

Figure II.11 : Branchement type des électrodes de garde pour la mesure de la résistance transversale.

Figure II.12 : Diagramme de Fresnel pour un condensateur contenant un diélectrique .

Figure II.13 : Circuit équivalent d'un diélectrique en parallèle.

Figure I.14: Principe du diffractomètre à poudre.

Figure I.15: Diffractomètre Bruker AVANCE X-RAY.

Figure I.16: Diffraction des rayons X Bruker AVANCE X-RAY.

Figure II.17: Schéma d'un spectromètre à transformée de Fourier.

Figure II.18 : Interférogramme en sortie du détecteur.

Figure II. 19: Spectromètre IR, type JASCO FT/IR-4200 équipé par l'ATR.

Figure I.20: Schéma du MEB.

Figure I.21: Microscope Electronique à Balayage (MEB, JEOL JSM modèle 7001F).

Figure II.22 : Modèle d'Obenaus.

Figure II.23 : Mécanisme de propagation par ionisation proposé par Qing Yang .

Figure II.24 : Courbure de la décharge dans la direction de l'écoulement du courant mettant en évidence une force.

Figure II.25: Représentation du modèle de simulation.

Figure II.26: Interface 1 et 2, et chemins possible pour l'intégration.

Figure II.27 : Circuit équivalent du modèle Obenaus modifié.

Figure II.28 : L'analyse de l'expression de propagation.

Figure II.29 : Organigramme de calcul du modèle dynamique.

Figure III.1: % en poids. de l'absorption d'eau mesurée sur des échantillons de PRC/ PVC chargés en BaTiO₃.

Figure III.2 : Effet de BaTiO₃ sur la permittivité des échantillons de PRC/PVC chargé au BaTiO₃.

Figure III.3 : Effet de BaTiO₃ sur le facteur de pertes des échantillons de PRC/PVC chargé BaTiO₃.

Figure III.4 : Effet de BaTiO₃ sur les pertes des échantillons de PRC/PVC chargés au BaTiO₃.

Figure III.5 : Spectres FT-IR de PRC pur et composites PRC/ BaTiO₃.

Figure III.6 : Image MEB de PRC pure, PRC chargé à 10%wt BaTiO₃, PRC chargé à 15%wt. BaTiO₃, et le zoom de la zone entourée d'un carré de Fig.6, c”.

Figure III.7: EDS de PRC pure et PRC chargé à 15%wt. de BaTiO₃.

Figure III.8 : Angle Diffraction des rayons X des échantillons PRC pure et chargé avant et après

vieillessement.

Figure III.9 : Condition aux limites et choix des paramètres de calcul.

Figure III.10 Distribution et répartition du champ électrique dans le cas du model plan-plan (matériaux verre).

Figure III.11 : Distribution et répartition du champ électrique (matériaux verre-PVC pur et chargé à 20% de BaTiO₃- PRC et chargé à 20% de BaTiO₃).

Figure III.12 : Distribution de la charge sur l'interface.

Figure III.13 : Forme approximative des lignes du champ électrique ($d=const$, e variable).

Figure III.14 : Courant de décharge en fonction de temps.

Figure III.15 : Courant de la décharge en fonction du temps, cas d'un isolateur de longueur de fuite 10cm, de largeur 1cm, de résistance linéique 380Ω/cm et une onde de 10/800μs.

Liste des tableaux

Tableau I.1: Exemples d'utilisation des isolants organiques solides.

Tableau I.2: Valeurs de $\lambda(n,m)$ obtenues dans différents matériaux.

Tableau II.1: Comparaisons des paramètres électrique.

Tableau II.2: les proportions des échantillons en PVC.

Tableau II.3: Les proportions des échantillons en PRC.

Tableau II.4: Constantes A et n selon Ghosh et al.

Tableau III.1: Taux d'absorption d'eau mesuré sur les échantillons en PVC & PRC.

Tableau III.2 : $\text{tg}\delta$ en fonction des fractions de BaTiO_3 .

Tableau III.3 : Les valeurs de la permittivité mesurée ϵ_{exp} and calculé ϵ_{theo} du Composite.

Tableau III.4 : Les valeurs maximales du champ électrique avec les différents Composites.

INTRODUCTION GENERALE

Les équipements haute tension présents dans les réseaux de transport de l'énergie électrique sont supposés opérer de façon fiable quelles que soient les conditions environnementales. En particulier, les isolateurs [1] et les gaines des câbles [2] utilisés dans l'isolation électrique des équipements nécessitent des satisfactions à divers exigences telles que la bonne isolation électrique, les faibles pertes diélectriques, une permittivité relative appropriée, une faible absorption d'eau, et une bonne résistance au vieillissement thermique [3].

De nos jours, les polymères sont bien connus pour être de bons isolants électriques et l'importante considération dont ils jouissent auprès des industriels et de la communauté scientifique en est la preuve [4,5].

Récemment, les matériaux synthétiques et les composites à base de polymères ont suscité un intérêt énorme, car ils sont en mesure de remplir ces exigences tel que le PRC, le PVC et le EPDM dans des câbles ; le EMPD, et la résine époxyde sont plus utilisés dans les isolateurs en composite [6-7].

Ces matériaux composites, particulièrement, les composites en PVC, PRC ont été étudiés durant cette dernière décade dans le but d'améliorer les propriétés diélectriques de ces matériaux appliqués aux gaine d'isolation pour les câbles, des isolateurs, ou des accessoires de connections [8-9,].

D'autre part, l'augmentation de la tension de la ligne de transport, la commutation, et les surtensions et conditions d'exploitation des systèmes électro-énergétiques sont des facteurs importants qui déterminent le niveau d'isolation de ces systèmes. Ainsi la connaissance de la distribution du champ électrique à l'intérieur et autour des dispositifs d'isolation est un aspect très important en ce qui concerne la conception et le développement de tels dispositifs [10]. Par ailleurs sous certaines conditions favorables, du point de vue élaboration et environnement dans lequel se trouve l'isolant, des décharges partielles dans l'isolant (en surface et en volume) peuvent naitre et mener au claquage ou bien le contournement complet de l'isolant [11]. Ce phénomène de décharges électriques et le contournement électrique est un des problèmes majeurs que rencontrent les exploitants des réseaux électriques. Il a toujours suscité un intérêt particulier aussi bien chez les industriels que les chercheurs [12-13]. Malgré les recherches théoriques et expérimentales considérables (empirique ou semi empirique) envisagées concernant ce phénomène, des efforts restent à faire afin d'élaborer un modèle mathématique général, qui peut prédire les paramètres de décharges.

De plus, L'une des causes du claquage des solides en générale et en particulier les polymères composites sont les charges électriques [14], qui sont injectées par les électrodes ou proviennent par dissociation de particules dans le volume du matériau. Nous entendons par charge d'espace, l'ensemble des charges électriques positives ou négatives, piégées dans un diélectrique, ce qui inclut les charges de surface et de volume [16]. A cet effet, plusieurs chercheurs ont focalisées leurs travaux sur la charge d'espace et son influence sur le comportement des polymères composites [17-18].

Ainsi dans le cadre de cette thèse des composites à base de PVC et de PRC chargé au BaTiO₃ ont été élaborés pour remédier au phénomène de charge d'espace et au problème de la distribution du champ électrique dans la matrice polymère. Hormis les composites, le verre est utilisé comme isolateur, nous le simulons sous environnement Comsol-multiphysics comme étude comparative avec le composite.

Le manuscrit est composé de trois chapitres :

Dans le premier chapitre, après avoir rappelé quelques généralités sur les matériaux polymères utilisés pour l'isolation électrique et leurs propriétés, nous décrivons plus particulièrement les théories et les différents mécanismes de dégradation de l'isolant. Une attention particulière est faite sur les phénomènes d'interface et les décharges sur les surfaces isolants.

Le second chapitre revient sur les matériaux utilisés et les différents procédés de synthèse et de mise en œuvre des échantillons. Il résume les techniques de vieillissement thermique et d'absorption d'eau utilisées afin d'étudier le comportement du matériau dans un environnement sévère (chaud et humide).

Les techniques de caractérisations des différents échantillons MEB, DRX, EDS et IFR sont aussi décrits dans ce chapitre.

Dans la deuxième partie du chapitre, nous décrivons les principaux modèles de claquage superficielles d'une surface isolante rencontrés dans la littérature. Par suite, on présente un modèle dynamique basé sur un circuit électrique équivalent qui utilise un critère de propagation dépendant du type de matériaux isolant.

Dans le troisième chapitre, nous présentons et discutons les différents résultats expérimentaux et de simulation respectivement. On termine le manuscrit par une conclusion générale et des perspectives.

Références bibliographiques introduction générale

- [1]. A.Cimador, M.Cojan, "Méthodes de dimensionnement des isolateurs des lignes aériennes en régions polluées" CIGRE , rapport 33-04-1978.
- [2]. K. Chonung, J. Zhijian and J. Pingkai, "Investigation of dielectric behavior of thermally aged XLPE cable in the high-frequency range", Polym. Test. Vol 25, 2006.
- [3]. A.Greenwood, " A perspective in insulation systeme in the électrique power industry", IEEE, trans on .Electrical insulation, Vol 15, N°3, 1980.
- [4]. O. Emelyanov; P. Kliuiko; M.Shemet; "Single partial discharge in nonuniform electric field for different polymer dielectrics " ; IEEE International Conference on Dielectrics (ICD); Vol 2, 2016.
- [5]. C. Bauer; R. Bonin; R. Brüstle; Christof Humpert; " Investigation of the Flashover and Breakdown Voltage of Thin Polymer Films in Liquid Nitrogen " ; IEEE Transactions on Applied Superconductivity , Vol 26, 2016.
- [6]. J. W. Zhang; T. C. Zhou; X. Chen; C. Yin; X. H. Zhang; R. Belouadah; "Analysis on dynamic surface potential decay of functional nanocomposite after corona discharge"; 11th International Conference on the Properties and Applications of Dielectric Materials (ICPADM) , 2015.
- [7]. Z. R. Yang; B. X. Du; J. Li; Z. L. Li; X. X. Cheng; M. M. Zhang; M. L. Fu; S. Hou ; "Influence of direct fluorination on space charge behavior in silicone rubber " ; IEEE International Conference on Dielectrics (ICD), Vol:1, 2016.
- [8]. M.DeFrutos, "On a novel tentative stereochemical microstructure based explanation of B-relaxation of poly(vinylchloride) (PVC) ", European Polymer Journal, Vol 41, 2005.
- [9]. P. Barber, S. Balasubramanian, Y. Anguchamy, "Polymer Composite and Nanocomposite Dielectric Materials for Pulse Power Energy Storage", Materials, Vol 2, 2009.
- [10]. Q. Yang "Modeling of DC Flashover on Ice-Covered HV Insulators Based on Dynamic Electric Field Analysis", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation Vol. 14, 2007.
- [11]. S Farokhi, M Farzaneh and I Fofana, "The effect of polarity on dc arc development over an ice surface", J. Phys. D: Appl. Phys. Vol 43, 2010.
- [12]. Qing Yang Rui Wang , "Electrical Circuit Flashover Model of Polluted Insulators under AC Voltage Based on the Arc Root Voltage Gradient Criterion", Energies, Vol 5, 2012.
- [13]. A. Ersoy, Y. Ozcelep Ayten Kuntman, "A Study on the Reliability of Polyester Insulators Blended with Borax"; Turk J Elec Engin, VOL.16, 2008.
- [14]. J. Gonzalez-Benito et al, "Composites based on HDPE filled with BaTiO3 submicrometric particles. Morphology, structure and dielectric properties", Polym. Test. Vol 32, 2013.
- [15]. M.A.Douar; "Recherche de matériaux isolants pour la conception d'une nouvelle génération de connecteurs électriques Haute Tension : Influence de la pollution sur les phénomènes de décharges partielles du contournement et de claquage"; thèse de Doctorat, école centrale de Lyon, 2014.
- [16]. O. Gallot-lavallee, "Etude de la charge d'espace et des phénomènes luminescents comme précurseurs du vieillissement électrique d'une résine époxy utilisée dans l'isolation haute tension"; Thèse de doctorat, l'Université Paul Sabatier-Toulouse III, 2004.
- [17]. S.Fall, "Etude du transport de charges dans les polymères semi-conducteur à faible bande interdite et de son impact sur les performances photovoltaïques"; Thèse de doctorat Université de Strasbourg, 2013.
- [18]. M. Ieda , "Dielectric breakdown process of polymers", IEEE Trans On Electrical Insulation, Vol.15, 1980.

CHAPITRE I.

Généralités et état de l'art sur les matériaux polymères utilisés pour l'isolation électrique.

I.1. Introduction:

Les matériaux polymères, appelés aussi matériaux plastiques ou simplement plastiques sont constitués de la répétition d'un grand nombre d'unités constitutives appelées monomères. Ces derniers sont des molécules organiques comprenant un ou plusieurs atomes de carbone. L'appellation matériau polymère est une combinaison des définitions d'un polymère et d'un plastique. Un développement remarquable, surtout en ce qui concerne les thermoplastiques, a été observé à partir de 1926 avec les travaux du chimiste allemand Staudinger ; le prix Nobel de chimie en 1953 pour sa contribution à la chimie macromoléculaire. Celui-ci est à l'origine de la mise en évidence, lors de ses investigations, que les matières polymères sont effectivement formées de longues chaînes moléculaires, appelées macromolécules [1]. Ce concept constitue encore aujourd'hui la base scientifique de l'étude systématique de ces matières.

Les principaux dérivés des thermoplastiques sont le polypropylène (PP), le polyéthylène (PE), le polystyrène (PS) et le polychlorure de vinyle (PVC). Une grande variété, de ces matériaux ont rapidement envahi le domaine de l'isolation électrique comme le montre le tableau I.1

Exemples de polymères isolants	Applications
Polyéthylène (PE)	Câbles HT, HF
Polyéthylène réticulé (PR)	Câbles THT
Polychlorure de vinyle (PVC)	Câbles BT
Polypropylène (PP)	Condensateurs de puissance
Polypropylène téréphtalate (PET)	Condensateurs de puissance
Polypropylène naphthalène (PEN)	Câbles, Condensateurs
Polysulfones, polyéther-éther-cétones (PEEK)	Accessoires électriques automobiles
Polyépoxy	Electrotechnique: entretoise, moteurs, isolateurs
Polyamides	Câbles BT des alimentations des avions

Tableau I.1: Exemples d'utilisation des isolants organiques solides [2].

I.2. Problématique:

Aux vues de leurs multiples utilisations, les matériaux polymères occupent une place essentielle dans l'isolation des systèmes électriques. La fiabilité de ces derniers est largement déterminée par la pérennité des propriétés des isolants. Les défaillances du matériel électrique sont souvent associées à des phénomènes de rupture diélectrique des isolants.

La baisse de performance des polymères est attribuée principalement au vieillissement électrique des isolations, terminologie générique qui regroupe l'ensemble des mécanismes par lesquels les différentes caractéristiques de ces matériaux en général et électriques en particulier, évoluent au cours du temps. Un grand nombre de facteurs agissent plus ou moins directement et influent sur le vieillissement et la durée de vie des isolants organiques. Ces phénomènes de vieillissement ont des origines très diverses. Nous pouvons recenser non seulement les contraintes "classiques" de type électrique, thermique ou mécanique, mais également des contraintes plus difficiles à cerner comme l'humidité, la présence anormale d'un type de molécule (impuretés) ou encore l'existence de radiations. La prédiction d'une rupture diélectrique à court ou à long terme demeure difficile à faire si l'on veut prendre en compte l'ensemble des paramètres intervenant dans le phénomène de vieillissement.

Le succès des matériaux composites provient de la possibilité d'obtenir des propriétés très diverses en fonction des caractéristiques des phases constituantes. Les propriétés de ces derniers interviennent dans le phénomène de vieillissement.

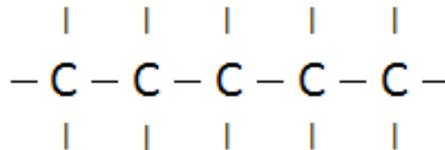
Nous débuterons cette étude par une description du lien étroit qui existe entre structure polymère composite et propriétés électriques des isolants dans le but d'améliorer le comportement des ces isolants. Nous exposons aussi dans ce chapitre le phénomène de claquage de ces matériaux sous contrainte de vieillissement thermique et d'absorption d'eau puisque ces derniers sont à l'origine de défaillances des équipements électriques tels que les gaines de câbles et les isolateurs.

I.3. Structure et morphologie des polymères:

Les matériaux polymères ont une structure complexe qui mène à des propriétés différentes au sein du même matériau. La connaissance de la structure d'une macromolécule individuelle, mais aussi celle de l'arrangement des macromolécules les unes par rapport aux autres, est essentielle pour mieux comprendre la complexité de ces systèmes. La microstructure d'un isolant polymère dicte les propriétés physiques, mécaniques et électriques, que l'on attend de ce matériau.

I.3.1. Structure chimique d'un polymère :

Les molécules de polymères sont des longues chaînes carbonées; leur nombre d'atomes constitutifs est le plus souvent supérieur à 1000, leurs masses molaires varient généralement de 104 à 107 g/mol et la longueur de la chaîne peut atteindre 10 μ m; c'est pourquoi on les appelle souvent macromolécules. La représentation bidimensionnelle la plus simple d'une chaîne polymère est la suivante :



L'élaboration d'un polymère se fait en reliant entre elles les unités de répétition (provenant elles-mêmes de l'ouverture d'une liaison dans le monomère) par des liaisons covalentes. La chaîne carbonée est appelée squelette du polymère. La Figure 1.1 représente en trois dimensions la chaîne moléculaire du polyéthylène (PE). Une telle chaîne n'est pas forcément rectiligne : bien qu'un atome de carbone forme un angle de 109,5° avec son voisin, il peut se placer dans un plan différent de celui des atomes voisins. Dans un polymère, les liaisons entre chaînes voisines sont assurées par des forces de Van der Waals [3]. Lors de la polymérisation, les macromolécules synthétisées à partir de molécules plus petites forment des chaînes dont la longueur et la masse molaire sont variables.

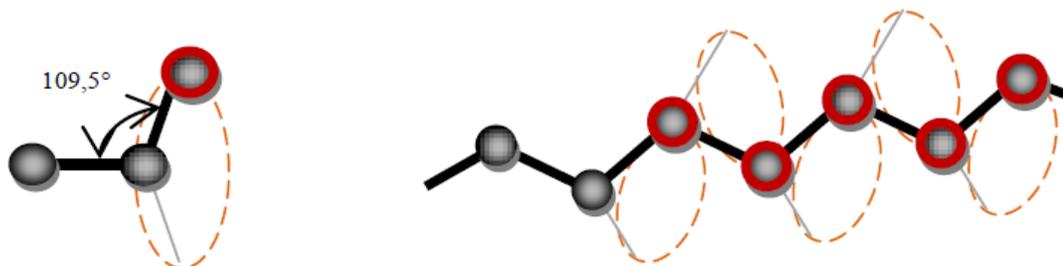


Figure I.1: Position des atomes de carbone dans une chaîne moléculaire.

La nature des liaisons chimiques mises en jeu, la complexité de l'arrangement macromoléculaire et la présence d'impuretés dans les chaînes, confèrent aux polymères une inhomogénéité de leurs réponses consécutive à une contrainte extérieure de type électrique par exemple. Cette propriété joue un rôle considérable dans l'évolution du phénomène de leur vieillissement [4].

I.3.1.1. Additifs :

La synthèse d'un polymère peut se faire de différentes manières : polymérisation anionique, cationique, radicalaire, en émulsion... Le point commun à ces synthèses est souvent la présence d'agents amorceurs de réaction et/ou de catalyseurs, qui sont ajoutés pour augmenter la vitesse

de polymérisation [5]. Malheureusement, 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. Ils ne peuvent donc pas être utilisés tels qu'ils sont. Lors de leur élaboration, les fabricants ajoutent diverses substances qui modifient et renforcent leurs propriétés en leur associant:

- Des antioxydants qui permettent aux polymères de ne pas réagir en présence de l'oxygène de l'air. Certaines molécules des antioxydants sont fixées en un endroit de la chaîne, tandis que d'autres circulent dans la phase amorphe. Ceci pourrait troubler l'image que l'on fait du milieu ;
- Des agents de réticulation: après réaction chimique, ces agents peuvent se lier aux chaînes de polymères pour former des ponts intermoléculaires, et permettent la formation d'un réseau macromoléculaire, qui confère au matériau une meilleure stabilité mécanique et thermique [6] ;
- D'autres additifs peuvent aussi être ajoutés, comme des plastifiants, des colorants, des charges, des ignifugeants..., en fonction des propriétés recherchées [7,8]. Tous ces additifs, lors de l'élaboration du polymère, peuvent réagir avec d'autres molécules, et se retrouver dans la matrice du polymère solide.

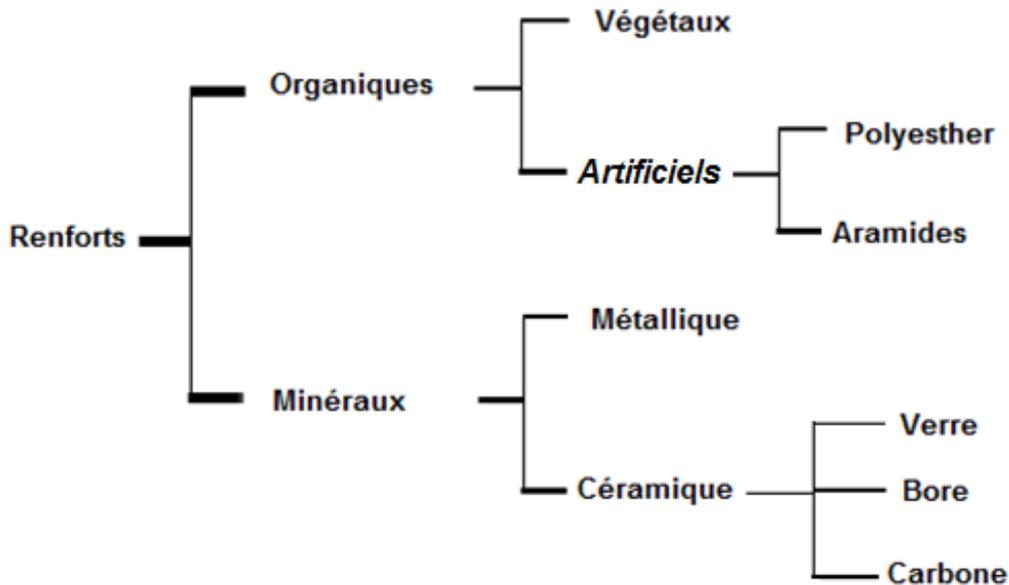
I.3.2. Structure physique d'un polymère :

On entend par structure physique l'architecture de la chaîne lors de l'élaboration du polymère. La cristallinité des polymères désigne l'arrangement des chaînes moléculaires en un réseau atomique ordonné. On peut décrire les structures cristallines à l'aide de leurs mailles élémentaires, qui sont souvent très complexes. En général, les substances constituées de petites molécules (comme l'eau) sont soit entièrement cristallines (état solide), soit entièrement amorphes (état liquide). En raison de leur taille et souvent de leur complexité, il arrive fréquemment que les molécules des polymères ne soient que partiellement cristallines (ou semi-cristallines) et qu'elles comportent des régions cristallines dispersées au sein du matériau amorphe. Tout désordre et tout défaut d'alignement dans les chaînes entraînent la formation d'une région amorphe, qui se produit d'ailleurs assez souvent puisque la torsion, l'entortillement et l'enroulement des chaînes empêchent l'arrangement ordonné de chaque segment de chaque chaîne. Le degré de cristallinité d'un polymère est fonction de sa vitesse de refroidissement durant la solidification, de la chimie moléculaire et de la configuration des chaînes [11].

I.4. Les polymères composites:

Un matériau composite est constitué de différentes phases nommées renforts et matrice. Lorsque le matériau composite est non endommagé, les renforts et la matrice sont parfaitement liés et il ne peut pas y avoir ni glissement ni séparation entre les différentes Phases.

La classification des types de renforts couramment rencontrés est indiquée comme suit :



I.5. Matériaux composites polymère/charge céramique ou métallique :

Pour améliorer les performances et posséder un bon diélectrique dans l'isolation électrique, la solution consiste à utiliser les matériaux composites. [9-10].

Les polymères composites doivent être préparés de façon à rechercher une interaction entre les avantages des polymères et les caractéristiques particulières des charges conduisant ainsi à des propriétés uniques. Pour être compatible avec la technologie existante, la matrice du composite est habituellement un polymère utilisé pour la fabrication des isolants (PVC, PEI). Les charges appropriées sont ajoutées aux polymères afin d'améliorer ces performances diélectriques. A cet effet, on ajoute habituellement des charges qui ont une constante diélectrique élevée. Les composites doivent être préparés de telle façon à regrouper entre les avantages des polymères et les caractéristiques particulières des charges [10]. Dans ce cadre par exemple, J.F. Lomax et al. ont amélioré les propriétés électriques du polyétherimide (PEI) de permittivité $\epsilon_{r \text{ PEI}} = 3,17$ en incorporant des nanoparticules de BaTiO_3 ($\epsilon_{r \text{ BaTiO}_3} = 3300$). Les auteurs de ce travail obtiennent un composite ayant une permittivité ϵ_{rc} entre 3 et 10 en fonction de la teneur en BaTiO_3 . La valeur de la permittivité du composite était expliquée à l'aide de l'équation suivante [11]:

$$\frac{\epsilon_1 - \epsilon_c}{\epsilon_1 - \epsilon_b} * \left(\frac{\epsilon_b}{\epsilon_c} * \frac{1}{\mu} \right) = 1 - P_{Par} \quad (\text{I.1})$$

où ε_b , ε_1 et ε_c représentent respectivement la permittivité relative du PEI, BaTiO₃, et le nano composite. P_{PAR} est la fraction volumique des particules et μ est un paramètre qui dépend de la subtilité et de la taille de la microstructure, tel que l'homogénéité de distribution des particules et la rugosité de la surface.

Le modèle de mélange exprimé ε_c comme suit [12]:

$$\log \varepsilon_c = P_{Par} * \log \varepsilon_1 + P_{Pol} * \log \varepsilon_b \quad (I.2)$$

D'autre part, le champ électrique moyen, E_{par} , agissant sur les particules dans un composite est donnée par l'équation (I.3),

$$E_{par} = \frac{3\varepsilon_b}{2*\varepsilon_b + \varepsilon_1 + P_{par}(\varepsilon_b - \varepsilon_1)} * E_{app} \quad (I.3)$$

Avec E_{app} est le champ électrique appliqué sur le composite et la P_{pol} est la fraction volumique du polymère.

Cependant, la rupture diélectrique dépend de l'équation de la probabilité cumulative de défaillance (I.4) pour une rigidité diélectrique donnée E tel que [11]:

E_0 est le champ caractéristique correspondant à la probabilité de défaillance de 63,2%.

L'exposant, αw est lié à la distribution des défauts présents dans le diélectrique.

$$P(E) = 1 - \exp\left[-\left(\frac{E}{E_0}\right)^{\alpha w}\right] \quad (I.4)$$

Dans la présente thèse, nous étudions les paramètres diélectriques du composite à basse de PVC et de PRC chargés au BaTiO₃. Ces matériaux seront exposés par la suite à l'humidité et au vieillissement thermique.

I.6. Réponse en fréquence des matériaux diélectriques (Mécanismes de polarisation) :

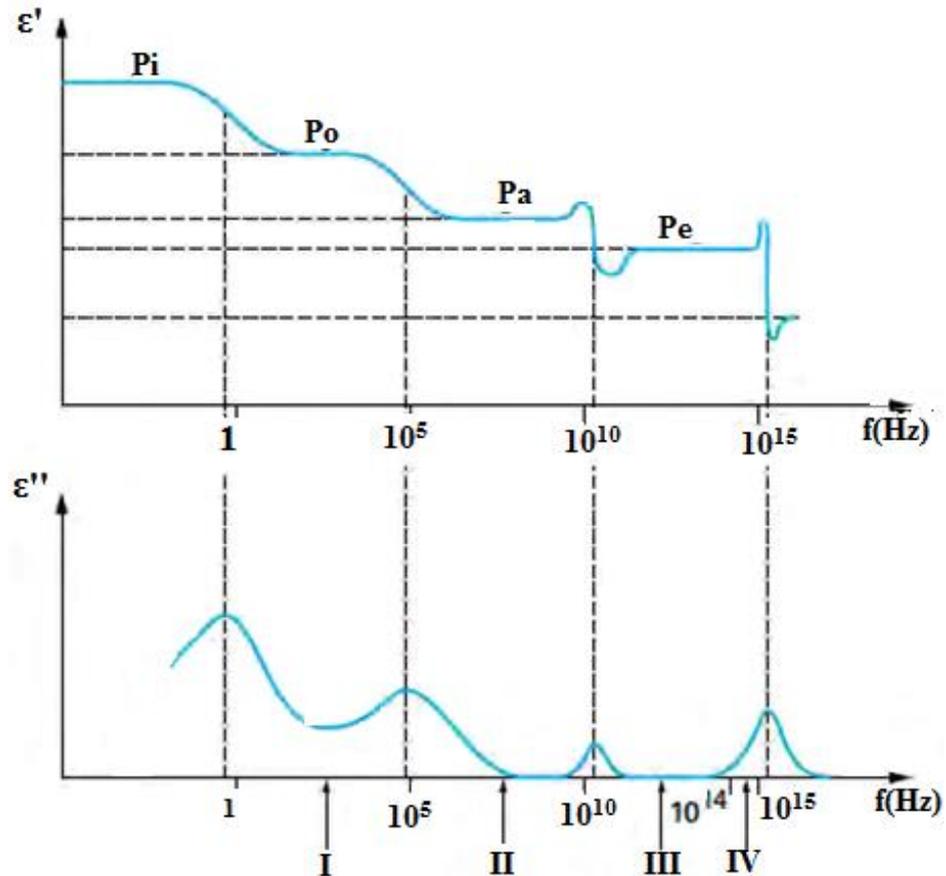
Lorsqu'un matériau diélectrique est soumis à une contrainte électrique, l'induction électrique (D) s'écrit :

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \quad (I.5)$$

La réponse du vide à la contrainte, $\varepsilon_0 \vec{E}$ est immédiate. En revanche, le terme polarisation (P) introduit une constante de temps, et est décrit selon quatre composantes :

- La polarisation électronique ou optique correspond au déplacement des nuages électroniques vis-à-vis du noyau des atomes. La constante de temps de ce phénomène est très faible ($\tau \sim 10^{-15}$ s).
- La polarisation ionique est le déplacement mutuel des ions constituant une molécule. Ce phenomena, atteint aussit rapidement l'équilibre ($\tau \sim 10^{-13} - 10^{-12}$ s).

- la polarisation dipolaire ou d'orientation, encore appelée polarisation de Debye. Ce phénomène décrit l'orientation des molécules (ou de fragments de molécules) polaires sous l'action du champ électrique. Les constantes de temps sont beaucoup plus élevées que pour les deux mécanismes précédents. Il s'agit généralement d'une distribution de constantes de temps correspondant à différents fragments de molécules.



$f(\text{Hz})$: fréquence; P_a : polarisation atomique; P_e : polarisation électronique; P_i : polarisation interfaciale; P_o : polarisation d'orientation; ϵ' : permittivité relative ; ϵ'' : Indice de pertes; I : domaine des audiofréquences; II : domaine des radiofréquences; III : domaine des fréquences infrarouges; IV : domaine des fréquences optiques.

Figure I.2: Mécanismes de polarisation et évolution de ϵ'' et ϵ' en fonction de la fréquence [12].

Lorsque deux matériaux de permittivité et de conductivité, différentes sont associés, il apparaît un terme supplémentaire dans la polarisation. C'est la polarisation interfaciale décrite par Maxwell. La polarisation interfaciale décrit également la migration de porteurs de charges libres vers l'électrode de signe opposé. On l'appelle dans ce cas polarisation par charge d'espace. Cette polarisation est caractérisée par un temps de relaxation relativement élevé ($>1\text{s}$). Compte tenu de ces phénomènes de polarisation, les matériaux diélectriques ont des réponses spécifiques à des contraintes alternatives. Ainsi, en fonction de la fréquence de la contrainte électrique, la

réponse du matériau est caractéristique des mécanismes de polarisation mis en jeu. Les différents mécanismes sont représentés en fonction de la fréquence sur la figure I.2.

I.7. Dégradation de l'isolant:

I.7.1. Mécanismes de claquage :

La rupture de l'isolation, dénommée claquage, peut arriver suivant différents mécanismes. Cependant, c'est selon les processus de pré-claquage, qu'on classe les mécanismes de claquage des diélectriques solides. Ils sont décrits dans plusieurs ouvrages [13–15]. Les principaux sont :

- Le *claquage électromécanique* résulte de la conjugaison des contraintes mécanique et électrique. Un tel mécanisme est dû à la pression électrostatique qu'exercent les électrodes sur l'isolant. Si cette pression est trop importante, l'épaisseur de l'isolant peut diminuer, en conséquence le champ électrique augmente et la tension de claquage diminue. Un tel effet peut être plus important pour une température élevée ou un échauffement du matériau. Il est cependant très rare dans les systèmes électriques. La pression exercée sur l'échantillon est [15]:

$$P = \frac{1}{2} * \epsilon * \left(\frac{V}{d_0}\right)^2 \quad (I.6)$$

V étant la tension appliquée et d_0 l'épaisseur initiale de l'échantillon.

A l'équilibre, cette pression sera égale à la réaction élastique du matériau et on aura :

$$\frac{1}{2} * \epsilon * \left(\frac{V}{d_0}\right)^2 = Y \ln\left(\frac{d_0}{d}\right) \quad (I.7)$$

Y est le module d'Young (ou d'élasticité) du matériau et d son épaisseur après compression.

- *claquage thermique*: Lorsque la conductivité électrique d'un matériau est trop importante, en général à cause d'une température élevée, la densité de courant occasionne plus de pertes et donc un échauffement par effet Joule. Cet échauffement augmente la conductivité, créant un emballement thermique. L'équilibre entre la dissipation thermique et l'énergie prise au champ est décrit par l'équation différentielle suivante :

$$\sigma * E^2 = C_v * \frac{\partial T}{\partial t} - \text{div}(k * \text{grad}T) \quad (I.8)$$

σ : conductivité électrique

C_v : Capacité thermique .

k : conductivité thermique.

- *Le claquage électrique*: On peut distinguer 2 groupes de théories de claquage électrique: les théories de claquage intrinsèque et les théories de claquage par avalanches.

Pour le 1^{er} groupe, c'est l'intensité du champ pour laquelle apparaît une instabilité du courant électronique dans le diélectrique qui correspond au champ critique provoquant le claquage

intrinsèque. Pour le 2ème groupe, on admet comme critère de claquage l'intensité du champ électrique pour laquelle le processus de multiplication d'électrons dans le diélectrique atteint des proportions inadmissibles (avalanches). Une structure filamentaire ramifiée constituée de micro-canaux se forme: l'arborescence électrique (figure I.3). La propagation des arborescences électriques a fait l'objet de nombreux travaux. Les plus récents sont ceux de Dissado [18] et Champion et Dodd [19-20] ; cependant d'autres études ont abordé ce phénomène dans les années 80 [17, 21].

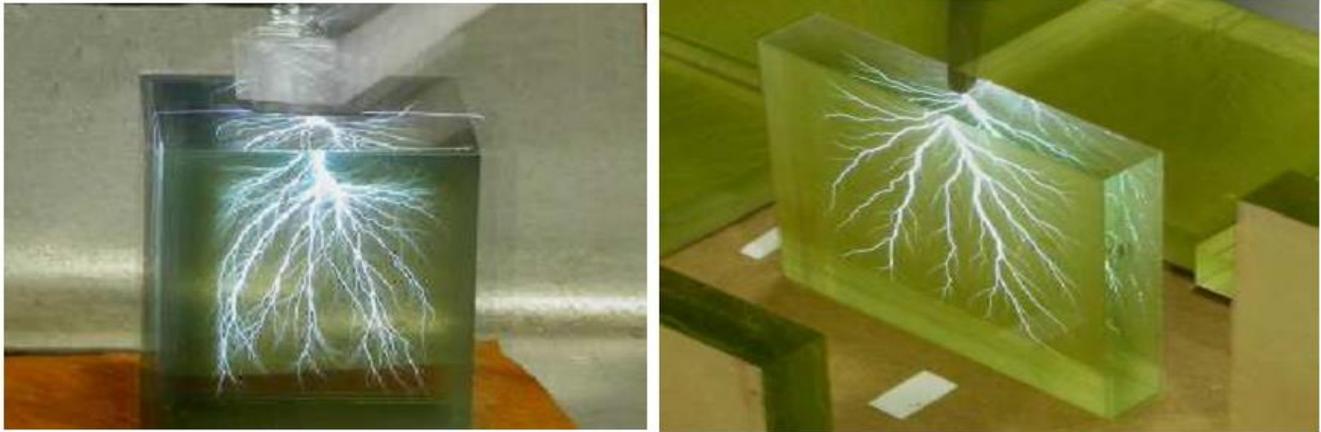


Figure I.3: Exemple d'arborescence [23].

I.7.2. Lois de vieillissement:

Nous présentons ci-dessous quelques lois qui décrivent le comportement du matériau dans le temps.

I.7.2.1. Loi de vieillissement thermique :

Généralement, les études, portant sur des contraintes thermiques appliquées à des matériaux, font appel au modèle arrhénien. Ce modèle est basé sur l'observation de la propriété P qui est en fait la tension de claquage [22- 24]. du matériau, évoluant dans le temps suivant la fonction F(P). Le vieillissement peut être défini par :

$F(P) = L \times t$ où L est la vitesse (ou taux) de vieillissement.

En 1981, Simoni a donné un modèle basé sur l'équation d'Arrhénius qui définit la constante de vitesse d'une réaction chimique [25]:

$$L_T = A * \exp\left(\frac{-B}{T}\right) \quad (I.9)$$

L_T étant la constante de vitesse de la réaction considérée, et dans notre cas c'est le taux de vieillissement. A et B sont des constantes . B est équivalent à une énergie d'activation en °K et T la température absolue.

Si on pose $\Delta T = \frac{1}{T_0} - \frac{1}{T}$

Et à la base de l'équation (I.9), on a $L_T = L_0 * \exp(-B\Delta T)$ (I.10)

La connaissance de la durée de vie à deux températures permet de déterminer B et L_0 (durée de vie à T_0).

I.7.2.2. Lois de vieillissement électrique :

Sous contrainte électrique, les lois de durées de vie sont principalement établies selon deux modèles [25-26] :

- ✓ la loi de puissance inverse où la durée de vie du matériau s'exprime par l'équation :

$$L_E = C * \left(\frac{E}{E_0}\right)^{-n} \quad (\text{I.11})$$

- ✓ la loi exponentielle, par analogie au vieillissement thermique, cette loi s'écrit :

$$L_E = K * \exp(-h * (E - E_0)) \quad (\text{I.12})$$

où L_E est la durée de vie sous le champ électrique E.

E_0 est une valeur seuil du champ électrique au-dessus de laquelle le vieillissement est effectif. C, n, K et h sont des constantes.

Cependant, lorsque aucune contrainte électrique n'est appliquée au matériau à température ambiante, sa durée de vie doit être L_0 telle que définie par le vieillissement thermique.

Ainsi dans le cas du modèle en puissance inverse, on a le système

$$\begin{cases} \ln\left(\frac{L_T}{L_0}\right) = -B * \Delta T \\ \ln\left(\frac{L_E}{L_0}\right) = -n * \ln\left(\frac{E}{E_0}\right) \end{cases} \quad (\text{I.13})$$

Pour le modèle exponentiel, le système devient :

$$\begin{cases} \ln\left(\frac{L_T}{L_0}\right) = -B * \Delta T \\ \ln\left(\frac{L_E}{L_0}\right) = -h * (E - E_0) \end{cases} \quad (\text{I.14})$$

Car pour $E = E_0$, $L_E = L_0 = K$.

I.7.2.3. Lois de vieillissement électro-thermique:

Eyring a développé un modèle qui exprime la durée de vie avec le couplage des contraintes électrique et thermique [16] :

$$L = A * \exp\left(\frac{-B}{T}\right) * \exp\left[\left(a + \frac{b}{T}\right) * f(E - E_0)\right] \quad (\text{I.15})$$

avec A, B, a et b des constantes indépendantes du temps, de la température et de la contrainte électrique. $f(E - E_0)$ est une fonction de la contrainte électrique.

NB : *Notion de contrainte seuil.*

La notion seuil c est la valeur de la contrainte en-dessous de laquelle la durée de vie tend vers l'infini en l'absence d'autres facteurs de dégradation.

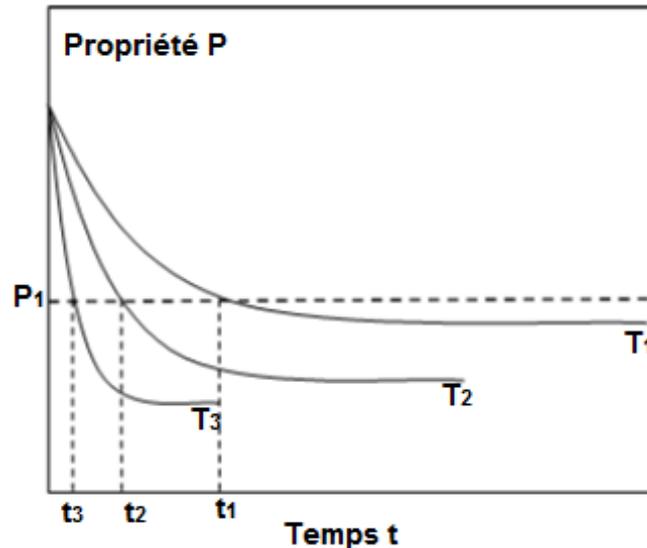


Figure I.4: Représentation de la durée de vie d'un isolant avec une valeur seuil de la contrainte électrique [27].

I.7.3. Etudes des charges d'espace:

Un isolant parfait ne devrait pas contenir d'autres charges que les noyaux atomiques et les électrons des couches internes de valence. En réalité, il n'existe pas d'isolant parfait. Ainsi, lorsqu'un isolant est soumis à de fortes contraintes (champ électrique élevé, irradiations, efforts et frottements mécaniques importants, variations de température), il apparaît dans certaines régions de l'isolant un excès de charges électriques, qu'on appelle charges d'espace. Ces charges présentes dans le matériau peuvent provenir:

- ✓ de la dissociation d'espèces neutres ou de la migration d'espèces ioniques, sous l'action de la température et/ou de la contrainte électrique. Ces espèces peuvent être des molécules du matériau ou des adjuvants divers (catalyseur, anti-oxydants, impuretés) ;
- ✓ l'injection de charges à partir des électrodes.

Et pour mieux éclaircir la description et l'interprétation des résultats expérimentaux (entre autre les charges d'espace) qui seront présentées dans le troisième chapitre, il est nécessaire de définir quelques termes qui seront utilisés [28].

- ✓ Charges d'espace : Elles sont définies comme étant l'ensemble des charges électriques, intrinsèques ou extrinsèques, contenues dans un isolant. Elles peuvent être des ions, positifs ou négatifs, des électrons (e^-) ou des trous ($+$).

- ✓ Charges capacitives : Ces charges sont situées sur les électrodes et sont dues à la tension appliquée ($Q = CV$).
- ✓ Charges induites : Ces charges sont localisées sur les électrodes et sont dues à la présence de charges dans l'isolant, ou résultent de la polarisation du matériau.
- ✓ Charges intrinsèques : Charges d'espace qui sont présentes dans le matériau avant toute contrainte. Elles sont issues des composés de base, additifs ou impuretés [29-30].
- ✓ Charges extrinsèques : Charges d'espace qui ont été introduites dans le matériau par les contraintes appliquées (traitements ou essais).
- ✓ Homocharges : Charges d'espace situées à proximité d'une électrode, de même signe que cette électrode (i.e. charges positives à l'anode, charges négatives à la cathode) [31].
- ✓ Hétérocharges : Charges d'espace situées à proximité d'une électrode, de signe opposé à cette électrode (i.e. charges positives à la cathode, charges négatives à l'anode).

I.7.4. Effet des charges d'espace sur le comportement des isolants :

Suite à la présence de charges d'espace dans le volume d'un isolant électrique, le champ électrique appliqué va subir une distorsion.

La figure I.5 illustre une des modifications du profil de champ en présence des charges d'espace de différentes sources [32]. .

Ces renforcements locaux peuvent également être à l'origine des défauts responsables de la dégradation rapide de l'isolant telles que les décharges partielles et les arborescences. Zhang, Lewiner et Alquié ont observé que le champ appliqué peut être multiplié par un facteur 5 à 8 au voisinage des électrodes après de longues polarisations sous contrainte continue [33].

À cet effet, les charges d'espace sont les responsables du vieillissement "silencieux" des isolants. Elles sont donc prises en compte dans les récents modèles de vieillissement tels que celui de Dissado, Mazzanti et Montanari [34] ou de Crine [35].

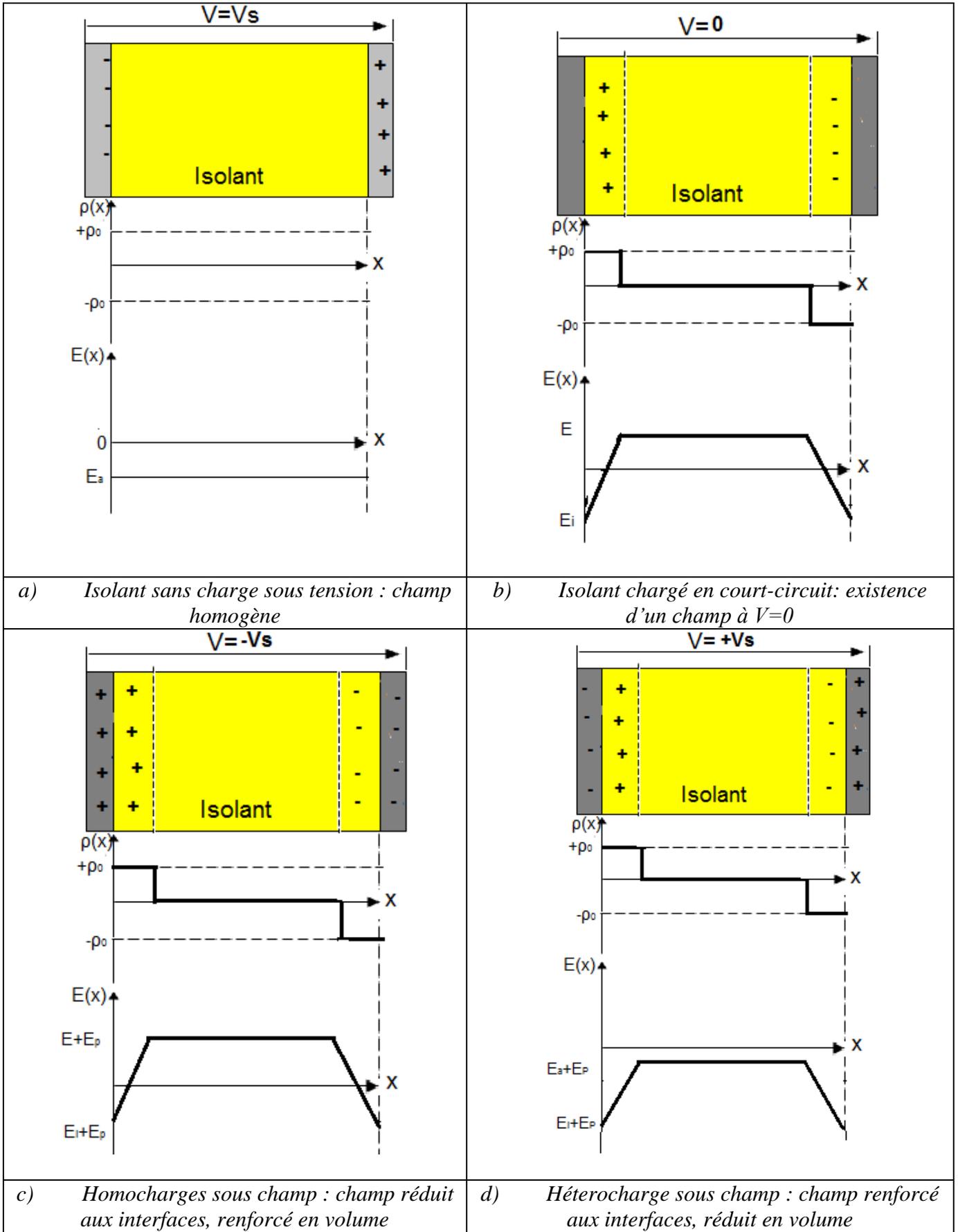


Figure I.5: Charges d'espace et distorsion du champ électrique [36].

I.7.5. Rôle des charges d'espace selon les modèles de vieillissement:

Dans les années 1990, les différents modèles développés évoluent et considèrent alors que les charges d'espace ont un rôle dans le vieillissement des matériaux. Dissado, Mazzanti et Montanari décrivent l'influence des charges d'espace sur le vieillissement comme suit [34, 37-38].

Pour ces auteurs, l'endommagement est associé à la présence de micro plutôt que de macro défauts. Les défauts microscopiques ou mésoscopiques sont associés à des régions de charges d'espace. Ces dernières sont surtout piégées par les parois des cavités déjà ou non présentes dans l'isolant ou sont localisées au niveau des inclusions et des contaminants conducteurs ou non.

Elles modifient significativement le champ local, augmentent la vitesse de réaction de vieillissement et peuvent introduire de nouveaux modes de dégradation. La distribution de ces charges d'espace dans l'isolant crée donc des champs locaux. Ces auteurs ont développé un modèle sur la base de ce phénomène [39].

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 I.6. 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. C'est-à-dire, 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 :

✓ 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.

✓ 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. Les contraintes mécaniques résiduelles peuvent être à l'origine de défauts dont la présence est fatale à l'isolant (fissures, vacuoles).

Ce modèle est proche de celui qu'utilise Crine pour la détermination des durées de vie à partir de mesures de tension de claquage sur du polyéthylène réticulé [35, 40].

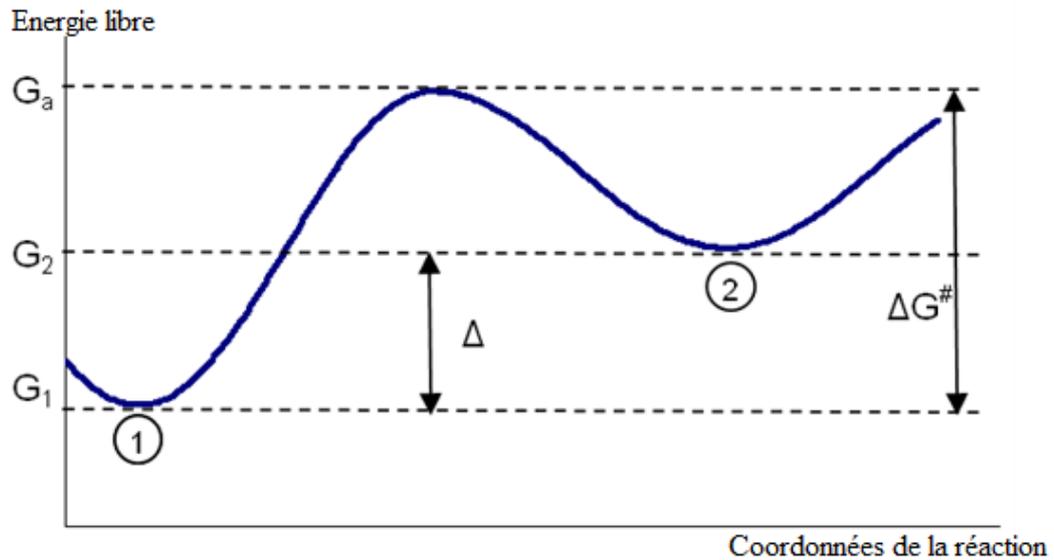


Figure I.6: Diagramme d'énergie [37,39].

I.8. Régimes de conduction :

I.8.1. Courant ohmique :

Les matériaux isolants obéissent également à la loi d'Ohm. La densité de courant circulant dans le matériau s'exprime en fonction du champ électrique par :

$$J = \sigma * E \quad (I.16)$$

J étant la densité de courant (A/m^2), E le champ électrique appliqué (V/m) et σ la conductivité du matériau (S/m).

La caractéristique courant-tension dans ce cas est linéaire. Cette loi est obtenue lorsque la conductivité du matériau ne dépend pas du champ appliqué, elle est donc limitée à de faibles contraintes électriques (quelques kV/mm).

I.8.2. Mécanisme Poole-Frenkel:

Ce mécanisme décrit le déplacement de porteurs se trouvant dans la bande de conduction et pouvant être piégés. La figure I.7 représente la configuration énergétique d'un piège dans le matériau

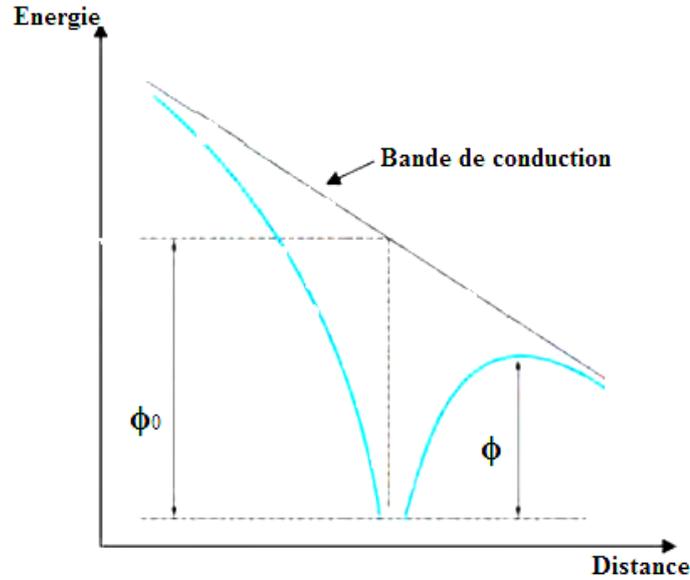


Figure I.7: Modification d'un piège énergétique par l'application d'un champ électrique.

Un porteur issu de la bande de conduction peut donc être piégé à la profondeur Φ_0 . Ce porteur peut se dépiéger en acquérant une énergie thermique kT permettant de passer au dessus de la barrière. Lorsqu'un champ électrique est appliqué au matériau, la configuration énergétique est modifiée et la barrière de potentiel est abaissée de la quantité :

$$\Delta\Phi = \Phi_0 - \Phi = \beta_{PF} E^{1/2} \quad (\text{I.17})$$

où β_{PF} est la constante de Poole-Frenkel qui s'écrit [41]

$$\beta_{PF} = \sqrt{\frac{\epsilon^3}{4 * \epsilon_r * \epsilon_0}} \quad (\text{I.18})$$

Frenkel a déterminé l'expression de la conductivité en fonction du champ appliqué. Cette expression est donnée par l'équation I.19, représentée par une droite sur un graphique $\ln\sigma = f(\sqrt{E})$ [41-42] :

$$\sigma = \sigma_0 * \exp\left[-\frac{(\Phi_0 - \beta_{PF} * E^{1/2})}{kT}\right] \quad (\text{I.19})$$

I.8.3. Modèle de la conduction par saut (ionique):

Le mécanisme Poole-Frenkel décrit au paragraphe précédent est observé pour une faible quantité de pièges. Ces pièges sont considérés alors comme isolés. Lorsque la densité de pièges augmente, la configuration énergétique est telle que représentée sur la figure I.8.

Le mécanisme de conduction ionique consiste en une série de sauts au dessus des barrières de potentiel, ce qui permet aux ions de se déplacer d'un état énergétique à l'autre. La densité du courant est donnée par l'équation [43]:

$$J = J_0 \sinh\left[\frac{q * \lambda * E}{k_B * T}\right] \quad (\text{I.20})$$

Où λ représente la distance de saut ionique.

On a alors deux cas de figure :

– Si $q * \lambda * E \ll k_B * T$, le courant est alors proportionnel au champ et on a un comportement ohmique.

– Sinon, dans le cas des champs forts (de l'ordre de 10^7 V=m) [42,44].

$$J = J_0 \exp \left[- \frac{q * \lambda * E}{k_B * T} \right] \quad (I.21)$$

Pour le tracé de $\ln J = f(E)$, on doit alors obtenir une droite d'une pente $\frac{q * \lambda * E}{k_B * T}$.

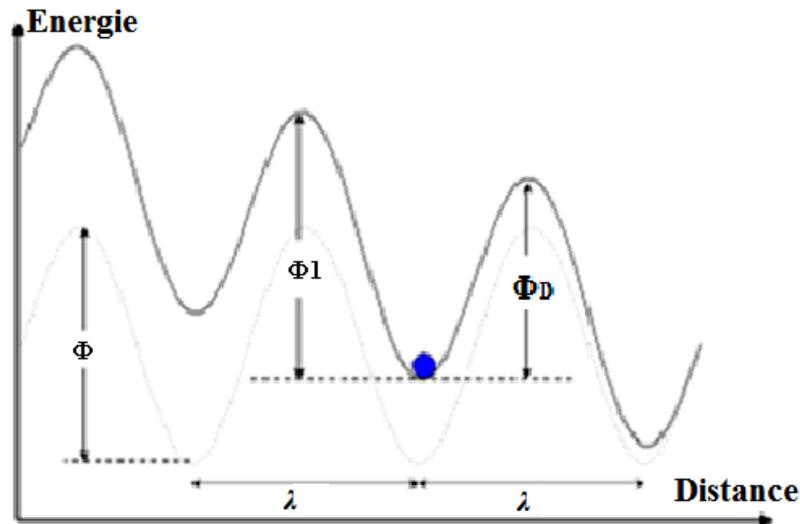


Figure I.8: Conduction par saut: représentation des hauteurs de barrière [45].

Quelques valeurs de λ sont données dans le tableau I.2.

Matériau	λ (nm)	Référence
PE	2.2	Lawson [44]
HDPE	0.9	Mizutano et Ieda [46]
PEEK	5.0	Das-Gupta et Brockley [47]
Epoxy	1.0	Griséri et al. [48]

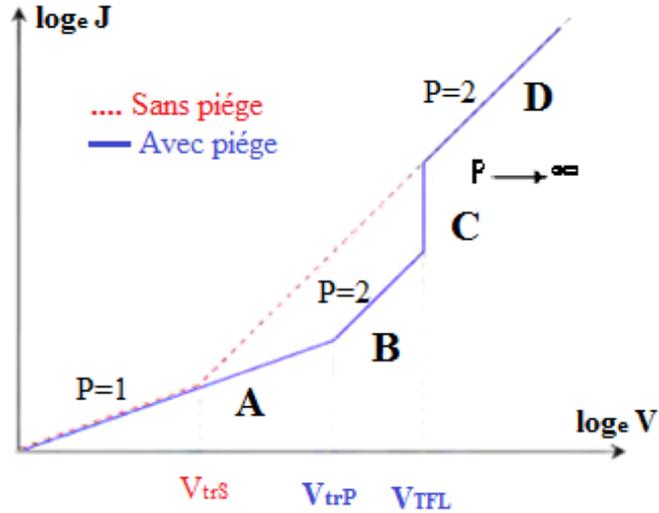
Tableau I.2: Valeurs de λ (n.m) obtenues dans différents matériaux

1.8.4. Courant limité par charges d'espace (SCLC):

Le régime de conduction SCLC (Space Charge Limited Current) [49-50] décrit l'évolution du courant lorsque les charges injectées sont plus importantes que les charges intrinsèques. La figure I.9 représente la caractéristique densité de courant-tension, avec les différents régimes associés à cette conduction.

On peut distinguer deux régimes caractérisés par des pentes différentes.

- la pente $p = 1$, cette région correspond au régime ohmique (Champ faible, zone A).
- La pente $p \geq 2$, cette région correspond aux différents régimes d'injection de charges (zones B, C, D).



A: Loi d'Ohm due aux porteurs intrinsèques. **B:** Loi de Mott-Gurney due aux pièges.

C: Région limite de remplissage des pièges (TFL). **D:** Loi de Mott-Gurney sans pièges.

Figure 1.9: Caractéristique courant-tension pour un mécanisme de conduction limité par charge d'espace [50].

La relation courant-tension va dépendre de la répartition énergétique et de la densité des pièges. En pratique, ce régime d'injection est souvent simplifié par une approximation avec la loi de Mott-Gurney :

$$J = \frac{9}{8} * \epsilon_r * \epsilon_0 * \theta * \mu * \frac{V^2}{d^3} \quad (I.22)$$

Où θ est le rapport du nombre des porteurs libres/porteurs piégés ; le produit $\theta * \mu$ est la mobilité effective ; d est l'épaisseur de l'échantillon ; et V la tension appliquée. Différentes tensions de transitions de cette caractéristique sont représentées sur la figure I.9, elles sont définies analytiquement par :

$$V_{trs} = \frac{9}{8} * q * n_0 * \frac{d^2}{\epsilon_r \epsilon_0} \quad (I.23)$$

$$V_{trP} = \frac{9}{8} * q * n_0 * \frac{d^2}{\theta \epsilon_r \epsilon_0} \quad (I.24)$$

$$V_{TFL} = \frac{9}{8} * q * N_t * \frac{d^2}{\epsilon_r \epsilon_0} \quad (I.25)$$

V_{trs} : la valeur de la tension pour laquelle les porteurs injectés sont prédominants par rapport aux porteurs intrinsèques.

V_{TFL} : la valeur de la tension pour laquelle tous les pièges ont capté un porteur.

N_t : est la densité totale de pièges.

I.9. Décharges partielles:

Selon la CEI, une décharge partielle est une décharge localisée dans une isolation. Celle-

ci est dite partielle car elle ne court-circuite pas l'ensemble de l'isolation. Plusieurs classifications des décharges partielles ont été proposées; elles varient selon le critère de sélection utilisé. Par exemple, Kreuger [51] classe les décharges en fonction de leur localisation et définit quatre catégories (Figure I.10) :

- **Les décharges internes:** elles prennent naissance en des endroits du diélectrique où la rigidité diélectrique est faible. Une cavité dans un solide ou une bulle dans un liquide par exemple.
- **Les décharges de surface:** elles se manifestent lorsqu'un champ tangentiel important existe à la surface d'un diélectrique.
- **Les décharges couronnes:** elles prennent naissance dans le matériau aux endroits où le champ électrique est très renforcé (par exemple par un effet de pointe). La décharge est restreinte à une zone réduite entourant la pointe.
- **Les arborescences:** un "arbre électrique" prend naissance sur un défaut de l'isolation. Il y a croissance d'une structure ramifiée composée de plusieurs branches.

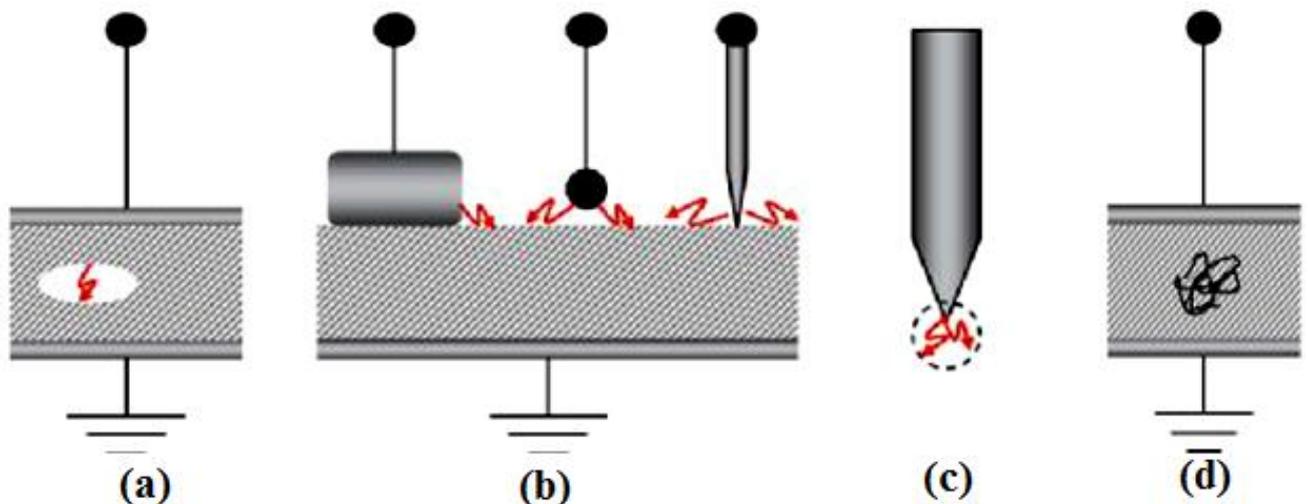


Figure I.10 : Différents types de décharges partielles selon Kreuger : interne (a), surface (b), couronne (c) et en arborescence (d).

I.9.1. Caractérisation des décharges partielles :

L'objet de ce paragraphe est de décrire brièvement les caractéristiques principales des décharges partielles de surface.

I.9.1.1. Décharges surfaciques :

Lorsqu'on est en présence de structures isolantes hétérogènes, on peut toujours s'attendre à des décharges surfaciques lorsque des champs tangentiels importants apparaissent aux interfaces. La Figure I.11 donne deux exemples typiques de décharges de surface.

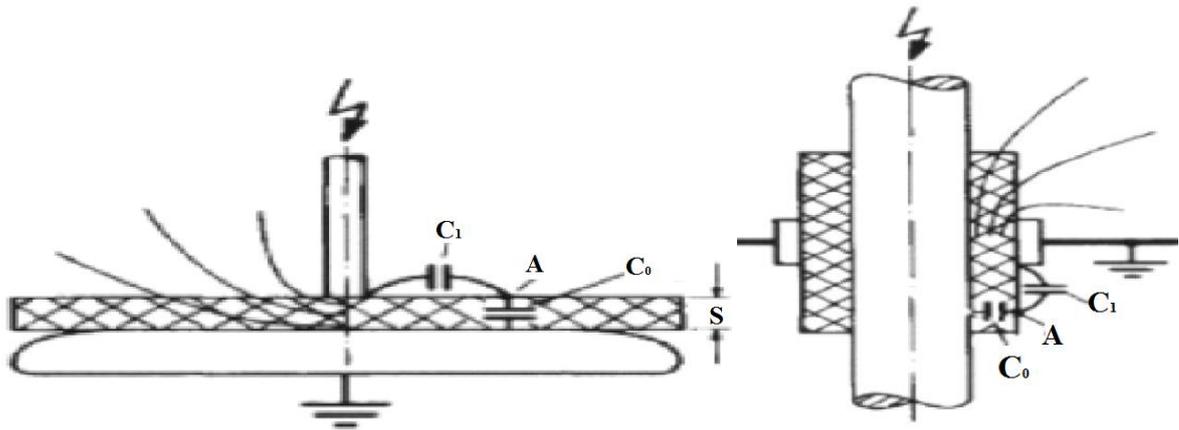


Figure I.11: Configuration de décharges de surface [52].

La forme de base des lignes équipotentielles peut être illustrée par des capacités C_0 et C_1 . Comme la capacité C_0 est beaucoup plus grande que C_1 , la quasi-totalité de la tension se trouvera appliquée aux bornes de C_1 . Quand la tension dépasse une tension dite seuil, des décharges partielles de couronnes apparaissent. Celles-ci se développent avec l'augmentation de la tension donnant naissance à des décharges glissantes le long de la surface de l'isolant. L'intensité de ces décharges surfaciques et la tension de leur apparition dépendent de la capacité C_0 [52].

I.10. Phénomènes d'interface:

L'étude des phénomènes de décharges surfaciques sur un isolateur en présence de gaz (ou mélange) est d'une importance capitale pour la conception et le dimensionnement des composants et systèmes électriques comme les buses de disjoncteurs (GIS, GCB, Switchgears ...), les espaceurs (ou cônes) dans les câbles à isolation gazeuse, les isolateurs de support et de traversée dans les appareils (transformateurs et condensateurs de puissance ...) et les lignes de transmission et de distribution de l'énergie électrique. Les mécanismes de décharge surfacique sont très complexes. Ils dépendent de plusieurs paramètres comme les propriétés physiques et géométriques du solide, le type de gaz (ou mélange) et sa pression, la géométrie des électrodes ainsi que la forme, la polarité et l'amplitude de la tension appliquée.

Même si certaines données expérimentales sur ce type de décharges existent [53-58], l'interprétation physique du phénomène est minime. Il est cependant bien connu qu'en présence de ces structures isolantes, plusieurs phénomènes physiques peuvent mener à l'apparition précoce d'une décharge dans l'intervalle inter électrodes. Parmi ces phénomènes, on peut citer principalement :

- l'interaction (effet combiné) dynamique entre la décharge glissante et la surface du solide diélectrique [55, 58,59].

- l'accumulation de charges électriques surfaciques [57,60], la modification des coefficients d'ionisation et d'attachement [61,62].
- ainsi que le phénomène de distorsion du champ électrique [56, 62-64].

I.10.1. Charges surfaciques:

Les isolants utilisés dans les systèmes de puissance sont susceptibles de se charger électriquement comme mentionné précédemment.

Les mécanismes qui y sont impliqués sont largement affectés par les charges accumulées à la surface de l'isolateur [79, 82, 89]. A priori, ces charges surfaciques sont susceptibles de modifier la distribution spatiale du champ électrique entre autres le long de l'axe des électrodes [57,60, 61]. Elles peuvent également augmenter l'énergie interne du diélectrique en introduisant un terme d'énergie électrostatique et un terme électromécanique associés à la déformation du réseau atomique [60]. En conséquence, elles peuvent changer les conditions de pré-disruption et créer alors des conditions de champ favorables à l'apparition des couronnes de streamers notamment au milieu de l'intervalle inter électrode [88]. La dynamique de la décharge peut également être influencée par l'apport énergétique de ces charges surfaciques en amplifiant le taux d'ionisation effectif pour une disruption prématurée [58].

I.10.1.2. Accumulation de charges surfaciques:

Des connaissances actuelles, on peut distinguer trois mécanismes pouvant conduire à l'accumulation de charge à la surface d'un isolant solide [66]:

- (1) le transport via le gaz de remplissage,
- (2) la conduction surfacique
- (3) la conduction à l'intérieur du diélectrique [65].

Différents mécanismes peuvent être impliqués dans la génération de charges électriques [67]. Le mécanisme (1) suggère que les charges produites autour d'une électrode diffusent dans le gaz de remplissage à travers des lignes de champ pour s'accumuler vers le centre de la surface du diélectrique. Quant au second (2), il préconise la circulation de charges à la surface du solide par l'effet du courant de fuite, alors que le troisième (3) est basé sur la migration vers l'extérieur de la surface du solide de charges produites à l'intérieur du diélectrique. Plusieurs travaux ont révélé que le mécanisme (1) était le plus conséquent. Cependant cela ne signifie pas que les deux autres ne peuvent pas être très efficaces si les conditions leur donnant naissance (caractéristique du champ appliqué, inhomogénéité du diélectrique) sont accentuées.

I.10.1.3. Charges surfaciques et champ électrique:

Après avoir été générés et transportés, les porteurs de charges s'accumulent à la surface

de l'isolant solide. Ces charges surfaciques modifient la distribution du champ électrique initial [68-70].

Considérons le schéma ci-dessous représentant une interface gaz/solide soumis à un champ électrique. La composante du champ incident dans le gaz vaut E_0 , et celle dans le solide diélectrique est E_i (figure I.12).

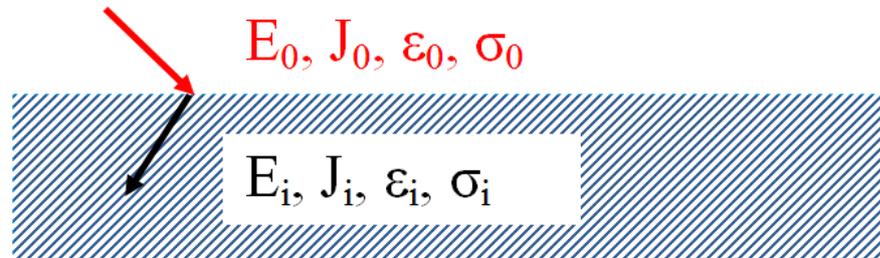


Figure I.12: Interface solide/gaz soumis à un champ électrique.

En appliquant les équations de continuité et de déplacement, on peut écrire :

$$\begin{cases} \varepsilon_0 * E_{n,0} - \varepsilon_i * E_{n,i} = \sigma_s \\ \sigma_0 * E_{n,0} - \sigma_i * E_{n,i} = -\frac{\partial \sigma_s}{\partial t} \end{cases} \quad (I.26)$$

où $E_{n,0}$ et $E_{n,i}$ représentent respectivement les composantes normales des vecteurs champs E_0 et E_i .

La composante la plus affectée du champ, selon la disposition du solide, est la composante normale [68]. Les charges accumulées agissent sur elle en la diminuant du côté du gaz tout en l'accentuant du côté du solide diélectrique. Cependant, cette composante normale ne pourra pas être inversée même si elle peut être largement réduite, ce qui signifierait que les pertes diélectriques deviennent nulles [71]. La composante tangentielle du champ a aussi tendance à changer sous l'effet des charges surfaciques. Une accumulation de charges négatives du côté de l'anode et de charges positives du côté de la cathode, renforce le champ tangentiel total dans les régions des électrodes et l'affaiblit dans la zone centrale de l'intervalle [72,68]. Cette variation est accompagnée de la réduction du champ normal jusqu'à ce que le régime stabilisé soit atteint. Dans le cas extrême où le champ normal devient proche de zéro, le champ tangentiel sera constant et égal au champ moyen sur toute la surface du diélectrique [73]. Etant donné que, durant tout le régime transitoire, le champ varie avec le temps avant d'atteindre cette condition de stabilité, le champ tangentiel sera faible au voisinage des électrodes et plus grand que le champ moyen dans la zone centrale de la surface du diélectrique [68]. Ce phénomène est aussi obtenu lorsque, pour une raison ou une autre, la variation du champ tangentiel vers le régime de saturation est stoppée avant que la condition de stabilité ne soit atteinte. La variation de la composante tangentielle du champ montre que, tant qu'il n'y a pas d'intensification du champ au niveau des électrodes, le champ électrique total est renforcé sur la surface du

diélectrique à mi-chemin des électrodes [72, 68, 74].

Dans le cas du régime alternatif, l'accumulation de charges est moins sévère qu'en régime continu car la constante de temps d'accumulation est beaucoup plus grande [68]. Cela est dû à la variation permanente du champ appliqué en alternatif.

I.10.2. Distorsion du champ électrique:

Le système le plus simple pour obtenir des décharges surfaciques est le système pointe - plan [75-77]. La distribution du champ électrique dans cet espace inter électrode est susceptible d'être modifiée par la présence d'un matériau diélectrique. Le comportement du champ, selon que la surface du diélectrique comporte ou non des charges électriques, n'est pas le même. L'accumulation de charges à la surface du diélectrique peut avoir comme conséquence la distorsion du champ électrique entre les électrodes. La figure I.13 montre des résultats de simulations effectuées en configuration pointe - plan pour déterminer le champ électrique dans l'espace inter électrode pour de petits intervalles et/ou en présence d'un diélectrique chargé ou non [78-79].

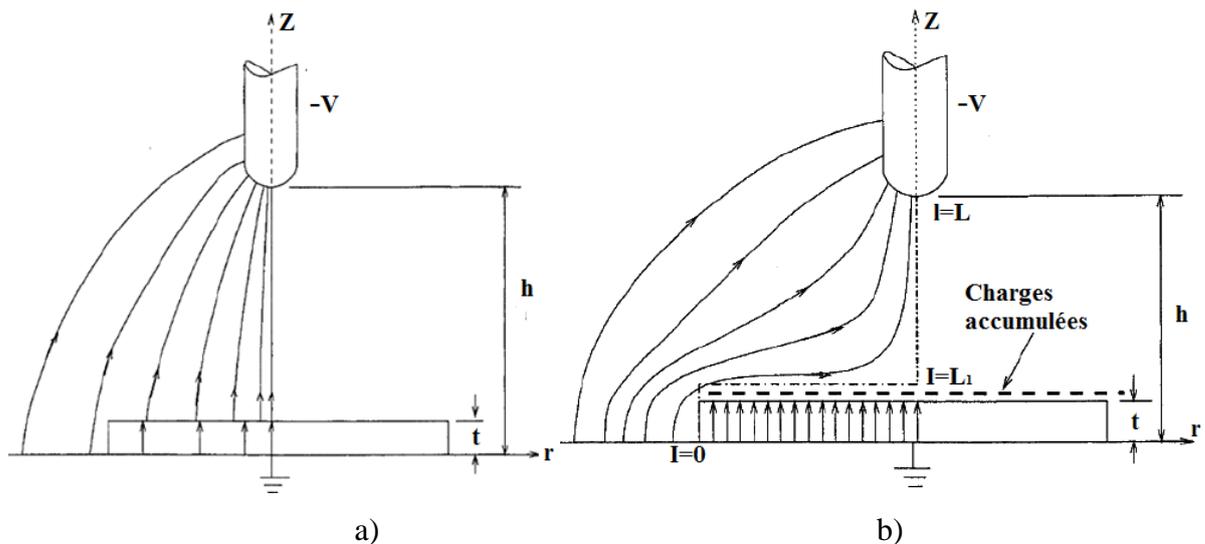


Figure I.13: Distribution des lignes du champ électrique dans l'espace inter électrode en présence d'un diélectrique. a) non chargé b) chargé [79].

En outre, la génération d'une décharge glissante à la surface d'un diélectrique solide en présence de gaz (interface gaz/solide) dépend de la condition essentielle de l'existence d'une composante tangentielle du champ électrique à la surface du diélectrique [68,80]. La figure I.14 [81] donne une illustration de ce phénomène lorsqu'une surface diélectrique est placée entre deux électrodes.

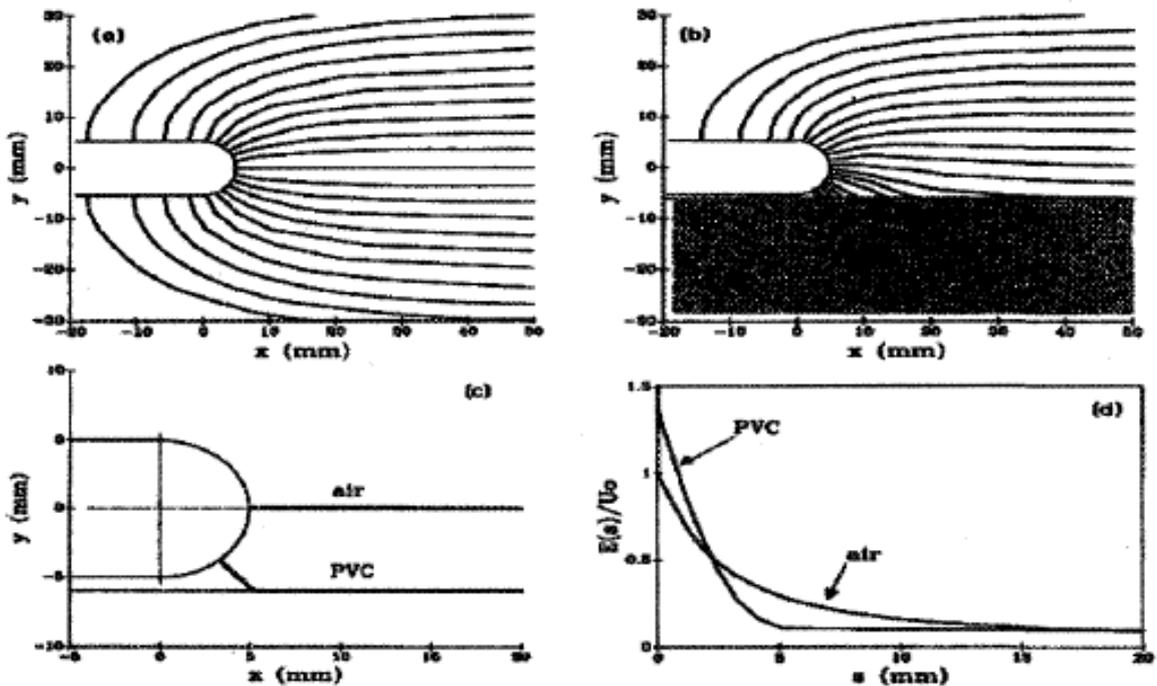


Figure I.14 : Comparaison du champ électrique autour de l'électrode haute tension dans l'air et en présence de surface diélectrique [81].

- (a) : lignes de champ dans un gap d'air
- (b) : lignes de champ en présence d'une surface de PVC ($\epsilon=4$)
- (c) : champ maximal sur une surface de PVC en présence d'air
- (d) : champ axial dans l'air en présence d'une surface de PVC

La distribution du champ est obtenue par simulation numérique pour un système d'électrodes tige – plan. On remarque que le diélectrique solide placé parallèlement à l'axe des électrodes peut déformer les lignes de champ en les dirigeant vers sa surface et en accentuant le champ aux alentours de l'électrode haute tension [81]. La ligne de champ maximal longe la surface du diélectrique solide en partant du point de l'électrode haute tension où le champ est le plus élevé. Par comparaison aux phénomènes se produisant dans l'air, la déformation des lignes de champ en présence d'un solide diélectrique entraîne un champ géométrique largement renforcé au voisinage de l'électrode haute tension et brusquement affaibli lorsqu'on s'éloigne de cette zone. Cette distorsion du champ est due au fait que la permittivité du solide diélectrique est relativement élevée par rapport à celle de l'air. En présence de la surface diélectrique, le volume critique, tel que défini dans le cas de l'air, sera réduit [82-83]. En effet, l'affaiblissement brutal du champ pour des points éloignés de l'électrode haute tension placerait le champ critique d'ionisation à une distance plus proche de l'électrode haute tension qu'il ne le serait dans le cas de l'air.

Cette réduction du volume critique indiquerait, pour une tension donnée, une probabilité de

génération d'électrons plus faible. Autrement dit, la tension requise pour amorcer une couronne de streamers en présence d'un solide diélectrique serait plus grande que celle dans le cas de l'air seul. Ce résultat théorique est cependant en contradiction avec ceux rapportés par d'autres chercheurs [81-86]. Il est donc certain que les mécanismes conduisant à la formation d'une décharge surfacique en présence de gaz ne peuvent dépendre uniquement de la distribution du champ électrique et de son intensité. Plusieurs autres facteurs telles que la température et la pression, et surtout la nature des deux phases constituant l'interface, notamment le gaz (ou mélange), la composition et la surface du solide diélectrique, entrent en jeu [87, 81, 68]. Ces facteurs, ajoutés à la distribution du champ local, auront naturellement comme principal effet de modifier les facteurs d'ionisation et d'attachement initiaux de l'intervalle de gaz.

I.10.3. Influence de la surface diélectrique sur l'initiation et la propagation des streamers:

L'initiation et la propagation des streamers en présence d'une surface diélectrique, comme dans le cas de l'air, seront fortement contrôlées par les coefficients d'attachement et d'ionisation [81]. Seulement ceux-ci seront grandement affectés par la présence de cette surface. Alors une surface diélectrique modifie les coefficients d'ionisation et d'attachement de deux façons selon la théorie proposée par Gallimberti *et al* [81] et mise en évidence par la figure I.15 ci-dessous :

- elle émet des électrons par l'effet du bombardement des photons. Ceci contribue à fournir davantage d'électrons déclencheurs d'avalanches et à favoriser davantage d'ionisations collisionnelles par augmentation de la quantité d'électrons présents dans le processus de la décharge. Cet effet a d'ailleurs été expérimentalement démontré sur les surfaces PTFE en présence de SF₆ [81].
- Elle peut attacher les électrons par des pièges et les ions positifs par attraction électrostatique causant ainsi davantage d'attachement en plus de celui déjà induit par le gaz de remplissage de l'intervalle inter électrodes.

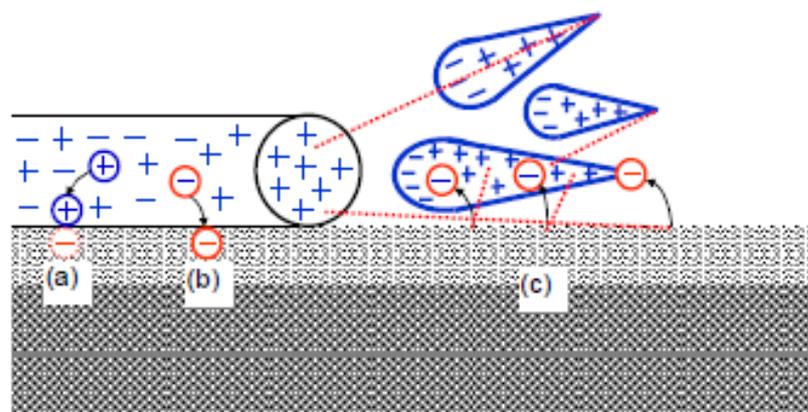


Figure I.15 : Processus fondamentaux contribuant aux phénomènes d'ionisation et

d'attachement dans la propagation d'un streamer à travers une surface diélectrique.

(a) : ion positif capturé par les forces électrostatiques

(b) : électron capturé à travers les pièges surfaciques

(c) : extraction d'un photoélectron contribuant aux ionisations collisionnelles

La figure I.16 ci-dessous présente les coefficients d'ionisation et d'attachement dans le cas de l'air et ceux modifiés par la présence d'une surface de PVC.

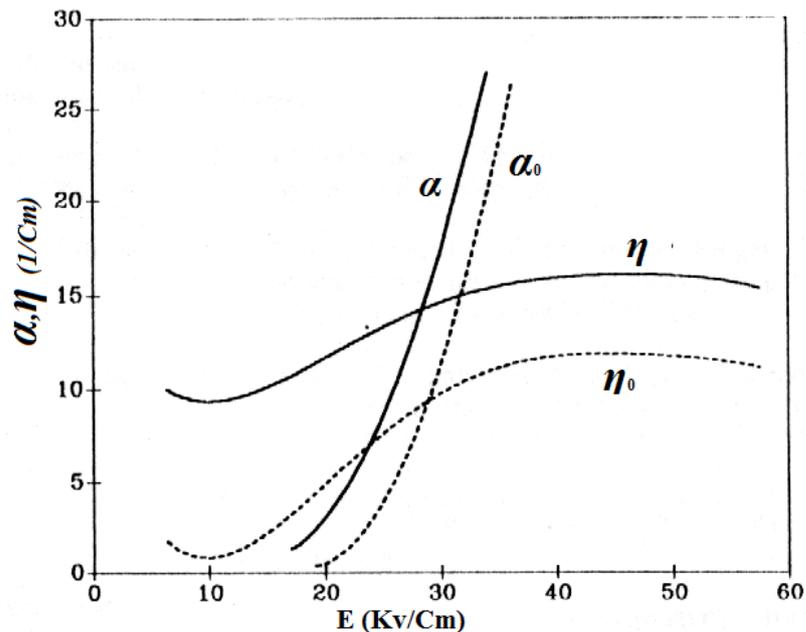


Figure I.16: Coefficients d'ionisation et d'attachement de l'air respectivement α_0 et η_0 (traits en pointillés) et ceux favorisés par la présence d'une surface en PVC (traits continus)[81].

Comme le suggère le mécanisme présenté par la figure I.15, on peut s'attendre à ce que l'initiation et la propagation des streamers le long d'une surface diélectrique soient contrôlées par des coefficients d'ionisation et d'attachement plus grands que ceux dans l'air. Ceci est de plus conforté par le fait que les recombinaisons des ions positifs sur des surfaces diélectriques peuvent contribuer à extraire des électrons de celles-ci ou du gaz environnant.

La plus faible énergie requise pour arracher un électron d'un solide est appelée travail d'extraction ($e\phi$). Cette énergie peut se présenter sous différentes formes : thermique (phonons, kT), photonique ($\hbar\nu$), énergie potentielle des atomes et des ions (eV^* , eVi), énergie cinétique ($\frac{1}{2}mV^2$) etc.

I.11. Les isolateurs composites :

Comme application des composites dans les réseaux électriques, nous décrivons dans le paragraphe suivant la configuration d'un isolateur type en composite.

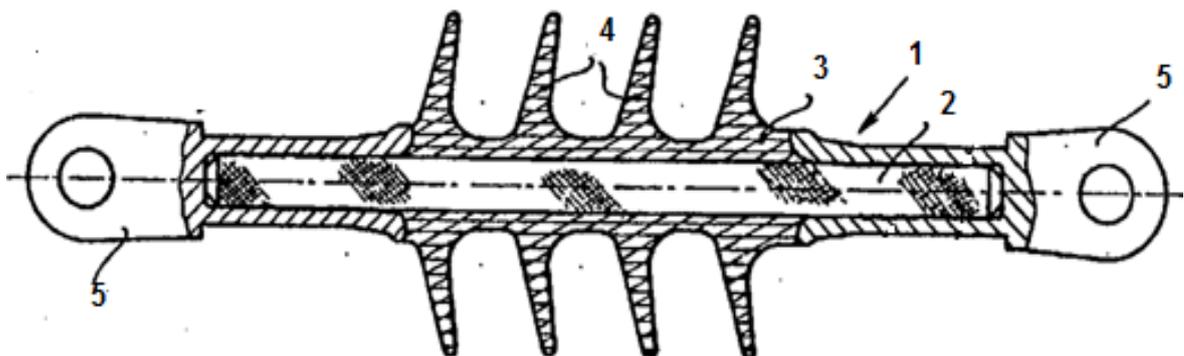
L'intérêt principal des isolateurs en composite est leur meilleure tenue à la pollution, leur faible encombrement, leur résistance à la dégradation et leur légèreté [88]. L'isolateur en composite doit répondre aux dispositions des spécifications technique telle que les normes (CEI 1109 ; CEI 61466 parties 1 et 2; CEI 120). Il est constitué de trois parties essentielles qui sont montrés sur la Figure I.17

I.11.1. Noyau: c'est l'élément mécanique porteur des isolateurs, il est composé d'une tige en résine Epoxy renforcée par des fibres de verre disposées dans une matrice à base de résine, la qualité des matériaux utilisés assure une résistance mécanique maximale en traction pour un fonctionnement fiable au cours du temps.

I.11.2. Revêtement (jupe): Constitué d'un matériau isolant synthétique tel que les caoutchoucs élastomère silicone ou EPDM ...etc de haute qualité d'isolation, Ce revêtement doit offrir à l'isolateur une remarquable résistance aux différentes sollicitations atmosphériques et aux intempéries.

Une gaine intermédiaire réalisée par une matière isolante assure la liaison entre le revêtement et le noyau.

I.11.3. Les extrémités métalliques: Faites en acier forgé galvanisé à chaud et assemblées par une liaison mécanique à sertissage coaxial pour assurer une haute résistance mécanique et aussi pour éliminer les infiltrations d'eau.



1: Noyau; 2: Tige; 3: Revêtement; 4: d'ailettes; 5: Les extrémités métalliques.

Figure I.17: Les composantes de l'isolateur composite.

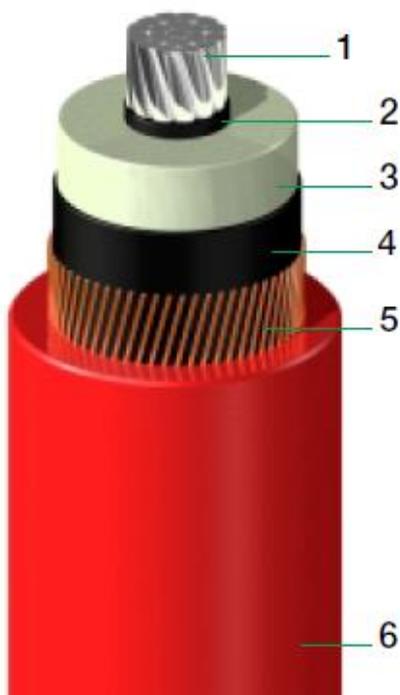
I.12. Les câbles électriques:

De même, les composites sont utilisés dans la fabrication des câbles électriques à haute tension qui sont utilisés pour le transport d'électricité, que ce soit en courant alternatif ou en

courant continu. Nous décrivons dans le paragraphe suivant la configuration d'un câble électrique MT.

Il est composé de différentes parties assemblées de manière concentrique (Fig. I.18) et il doit répondre aux dispositions des spécifications techniques telles que les normes (IEC-60332.1, 60502-2.60840 et UNE-EN 50265-1 UNE-EN 50267

Les principales parties sont les suivantes. Au centre un conducteur représentant l'âme permet de transporter l'électricité, ensuite vient une isolation électrique pour empêcher le courant de s'écouler vers la terre, le tout est entouré d'une gaine métallique afin de confiner le champ électrique à l'intérieur du câble et d'assurer une protection extérieure qui assure de bonnes propriétés mécaniques et le protège des agressions extérieures.



1. Ame en cuivre ou en aluminium.
2. Ecran semi-conducteur extrudé sur l'âme.
3. Enveloppe isolante : en polyéthylène réticulé.
4. Ecran semi-conducteur pelable sur isolant.
5. Ecran constitué d'un ruban en cuivre de 0,1 mm d'épaisseur enroulé en hélice.
6. Gaine extérieure: noire en PVC

Figure I.18 : *Les composantes d'un câble électrique MT.*

Références bibliographiques chapitre I

- [1]. B. Wurtemberg, "The Foundation of Polymer Science by Hermann Staudinger (1881-1965)", commemorative booklet produced by the an international Historic Chemical Landmarks, the American Chemical Society, 1999.
- [2]. N. Lahoud, "Modélisation du vieillissement des isolants organiques sous contrainte électrique Application à la fiabilité des matériaux", Thèse de Doctorat de l'université de TOULOUSE, 2009.
- [3]. H. Jiangb, G. Ravichandranc, H. Gaod, K.C. Hwange; "A cohesive law for carbon nanotube/polymer interfaces based on the van der Waals force"; *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, Vol 54, 2006.
- [4]. W.L.Xua, B.Wu, F. Zheng, "Homogeneous phase separation in polymer:fullerene bulk heterojunction organic solar cells", *Organic Electronics*, Vol 25, 2015.
- [5]. T. Senninger, "catalyse de polymérisation", *Technique d'ingénieur*, Référence J1260-1998.
- [6]. B. George, "Effect of the nature of the crosslinking agent on the metal-ion complexation characteristics of 4 mol % DVB- and NNMBA-crosslinked polyacrylamide-supported glycines", *J. Applied Polymer*; Vol 74, 1999.
- [7]. H.G.Elias, "Plastics, General Survey", *Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry*, DOI:10.1002/14356007, 2005.
- [8]. El.Teuten, J.M.Saquin, DR.Knappe, "Transport and release of chemicals from plastics to the environment and to wildlife", *Philos. Trans. R. Soc. Lond., B, Biol. Sci.* 364 (1526): 2027–45.
- [9]. B. Adhikari, "Polymers in sensor applications", *Progress in Polymer Science*, Vol 29, 2004.
- [10]. T. H. Qazi1, R.Ranjana, "Tissue engineering of electrically responsive tissues using polyaniline based polymers:A review"; *Biomaterials*, Vol 35, 2014.
- [11]. J. Adam et al., "Ferroelectric properties of composites containing BaTiO₃ nanoparticles of various sizes", *Nanotechnology*, Vol 25, 2014.
- [12]. J. C. Dubois. "Propriétés diélectriques des polymères", *Technique de l'Ingénieur*, Article E 1850, 1998.
- [13]. L. A. Dissado, J. C. Fothergill, "Electrical degradation and breakdown in polymers", *Peregrinus*, 1992.
- [14]. J.C. Andetson, "Diélectriques", *Dunod*, 1966.
- [15]. J.J. O'dwyer, "The theory of electrical conduction and breakdown in solid dielectrics", *Clarendon Press*, 1973.
- [16]. S. G. lasstone, K.J. Laidler, "The theory of rate processe", *McGraw Hill NY*, 1941.
- [17]. C. Laurent, C. Mayoux, "Analysis of propagation of electrical treeing using optical and electrical methods", *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, Vol 15, 1980.
- [18]. L.A. Dissado, "Understanding electrical trees in solids : from experiment to theory", *IEEE Transactions on Dielectrics Electrical Insulation*, Vol. 9, 2002.
- [19]. J.V. Champion, S.J. Dodd, "The effect of material age on the electrical tree growth and breakdown characteristics of epoxy resins *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 28, 1995.
- [20]. J.V. Champion, S.J. Dodd, S.G. Swingler, "Morphology and the growth of electrical trees in a propylene/ethylene copolymer", *IEEE Transaction on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 8, 2001.
- [21]. P. Budenstein, "On the mechanism of dielectric breakdown of solids", *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, vol. EI-15, 1980.

- [22]. F. Sandrolini, A. Motori G.C. Montanari, L. Simoni, "Evaluation of thermal and electrical aging of an insulating composite material by dielectric and microstructural investigations", IEEE International Symposium on Electrical Insulation, 1984.
- [23]. J.V. Champion, S.J. Dodd, "Simulation of partial discharges in conduction and non-conduction electrical tree structures", Journal of Physics D : Applied Physics, Vol. 34, 2001.
- [24]. G.C. Montanari, G. Pattini, "Thermal endurance evaluation of insulating materials: a theoretical and experimental analysis", IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol. EI-21, 1986.
- [25]. L. Simoni, "A general approach to the endurance of electrical insulation under temperature and voltage", IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol. EI-16, 1981.
- [26]. G.C. Montanari, L. Simoni, "Aging phenomenology and modeling", IEEE Transaction on Electrical Insulation, Vol. 28, 1993.
- [27]. G.C. Montanari, "Electrical life threshold models for solid insulating materials subjected to electrical and multiple stresses – Investigation and comparison of life models", IEEE Transaction on Electrical Insulation, Vol. 27, 1992.
- [28]. A. Toureille, P. Nothinger, S. Agnel, "Les charges d'espace: définition, historique, mesure. In : Matériaux diélectriques pour le génie électrique", Paris : Hermes-Lavoisier, Vol 1, 2007.
- [29]. N. Hozumi, T. Takeda, H. Suzuki, "Space charge behavior in XLPE cable insulation under 0.2-1.2 MV/cm dc fields", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol 5, 1998.
- [30]. T. Mizutani, K. Shinmura, "Effect of anti-oxidants on space charge in low-density polyethylene", Proceedings of the 2001 IEEE 7th International Conference: Solid Dielectrics, 2001.
- [31]. S.H. Lee, J.K. Park, K.S. Suh, "The effect of low-molecular-weight species on space charge and conduction in LDPE", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 4, 1997.
- [32]. N. Hozumi, H. Suzuki, A. Watanabe, "Direct observation of time dependent space charge profiles in XLPE cable under high electric fields", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 1, 1994.
- [33]. Y. Zhang, J. Lewiner, C. Alquié, "Evidence of strong correlation between space-charge buildup and breakdown in cable insulation", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 3, 1996.
- [34]. L. Dissaso, G. Mazzanti, G.C. Montanari, "The incorporation of space charge degradation in the life model for electrical insulating materials", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 2, 1995.
- [35]. J.P. Crine, "A molecular model to evaluate the impact of ageing on space charge in polymer dielectrics", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 4, 1997.
- [36]. C. Laurent, "Diélectriques solides et charge d'espace", Techniques de l'Ingénieur, Vol. D, 1999.
- [37]. L. Dissaso, G. Mazzanti, G.C. Montanari, "The role of trapped space charges in the electrical aging of insulating materials", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 4, 1997.
- [38]. L. Dissaso, G. Mazzanti, G.C. Montanari, "Space-charge life model for ac electrical aging of polymers", IEEE Transaction on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 6, 1995.
- [39]. J.P. Crine, "Electrical aging and breakdown of crosslinked polyethylene cables", International Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, 2002.
- [40]. J. Frenkel, "On pre-breakdown phenomena in insulators and electronic semi-conductors", Physical Review, Vol 54, 1938.

- [41]. Y. Ségui, "Diélectriques - Courant de conduction", *Technique de l'Ingénieur*, Article D, 2000.
- [42]. N.F. Mott, R.W. Gurney, "Electronic processes in ionic crystals Clarendon, "Press, Oxford, 1940.
- [43]. W.G. Lawson, "High-field conduction and breakdown in polyethylene", *British Journal of Applied Physics*, Vol.11, 1978.
- [44]. C. Guillermin, "Vieillessement électrique et thermique d'un composite résine époxyde-silice: étude des charges d'espace et de la conduction", Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier Grenoble I.
- [45]. T. Misutani, M. Ieda, "Carrier transport in high-density polyethylene", *Journal of Physics D : Applied Physics*, Vol. 12, 1979.
- [46]. D.K. Das Gupta, K. Doughty, "Dielectric and conduction process in polyetherether ketone (PEEK) ", *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, vol. EI-22, 1987.
- [47]. V. Griseri, K. Fukunaga, D. Mary, " Charge injection, electroluminescence, and ageing of an epoxy resin in high divergent fields", 8th IEE International Conference on Dielectric Materials, Measurement and Applications, 2000
- [48]. M.A. Lampert, P. Mark, "Current injection in solids", Academic Press, 1970.
- [49]. R. Bartinikas and R. M. Eichhorn. "A-Electrical Properties of Solid Insulating Materials : Molecular structure and Electrical Behavior", *Engineering Dielectrics Vol 2*, 1983.
- [50]. F. H. Kreuger, "Industrial high voltage", Delf University press., Vol. 1. 1991.
- [51]. K. Dieter, "An Introduction to High Voltage Experimental Technique". Vieweg, 1978.
- [52]. I. N'Diaye, "Approche physique du développement de streamers positifs sur une surface de glace", Thèse de doctorat, Université du Québec à Chicoutimi, 2007.
- [53]. M. Farzaneh, I. Fofana, I. Ndiaye, K. D. Srivastava, "Experimental studies of ice surface discharge inception and development". *Int. J. Power Energy Syst*, Vol. 26, 2006.
- [54]. T. S. Sudarsham, R. Dougal, "Mechanisms of surface flashover along solid dielectrics in compressed gases", *Review, IEEE Trans. of Electr. Insul.* Vol 21, , 1986.
- [55]. N. L. Allen, B. H. Tan, "Initiation of positive corona on insulator surface". *Proc. Of the 12th Int. Symp. on High Voltage Engineering.*, Bangalore, India, Vol. 3, 2001.
- [56]. A. S. Pilla, R. Hackam, "Modification of electric field at the solid insulator vacuum interface arising from surface charges on the solid insulator", *J. Appl. Phys.*, Vol. 54, 1972.
- [57]. N. L. Allen, D. C. Faircloth, "Corona propagation and charge deposition on a PTFE surface", *IEEE Trans. Electr. Insul.*, Vol. 10, 2003.
- [58]. N. L. Allen, P. N. Mikropulos, "Streamer propagation along insulating surfaces in air", *IEEE Trans. Electr. Insul.*, Vol. 6, 1999.
- [59]. C. Laurent, "Diélectriques solides et charges d'espace", *Techniques de l'Ingénieur, Traité d'électricité D2305*, Vol. D2II, 1999.
- [60]. H. F. A. Verhaart, A. J. L. Verhage, "Insulator flashover in SF6 gas", *Kema Scientific and Technologic Reports*, Vol. 6, 1988.
- [61]. I. Gallimberti, I. Marchesi, L. Niemeyer, "Streamer corona at an insulating surface", *Proc. of 7th Int. Symp. on High Voltage Engineering.*, Dresden, Germany, 1991.
- [62]. I. Ndiaye, "Étude de l'apparition et de la propagation de décharges couronnes à la surface de la glace", *Maitrise, Université du Québec à Chicoutimi*, 2003.
- [63]. M. Akyuz, L. Gao, V. Cooray, A. Larsson, "Positive streamer discharge along insulating surface", *IEEE Trans. Electr. Insul.*, Vol. 8, 2001.
- [64]. T. Jing, "Surface charge accumulation: an inevitable phenomenon in DC GIS", *IEEE Trans. Electr. Insul.*, Vol. 2, 1995.

- [65]. F. Sadaoui, " Comparaison des caractéristiques électriques et optiques des décharges glissantes sur différents types d'isolateurs dans le CO₂, le SF₆ et le N₂ et leurs mélanges à différentes pressions", Thèse de doctorat; L'école doctorale de LYON, 2013 .
- [66]. M.L. Coulibaly, "Caractérisation des décharges électriques se propageant aux interfaces gaz/solide – Relation entre propriétés des matériaux et dimension fractale", Thèse doctorat, L'école centrale de LYON, 2009.
- [67]. T. Jing, "Surface charge accumulation: an inevitable phenomenon in DC GIS", IEEE Trans. Electr. Insul., Vol. 2, 1995.
- [68]. S. M. Korobeynicov, A. V. Melekhova, G. G. Furin, "Mechanism of surface charge creation due to image forces", J. Phys. D. Appl. Phys., Vol. 35, 2002.
- [69]. X. Jun, I. D. Chalmers, "The influence of surface charge upon flashover of particlecontaminated insulators in SF₆ under impulsevoltage conditions", J. Phys. D. Appl. Phys., Vol. 30, 1997.
- [70]. T. Jing, P. H. F. Morshuis and F. H. Kreuger, "Mechanisms of surface charge accumulation in SF₆", Archiv Elektrotech., Vol. 77, 1994.
- [71]. C. Laurent, "Diélectriques solides et charges d'espace", Techniques de l'Ingénieur, Traité d'électricité D2305, Vol. D2II, 1999.
- [72]. K. Nakanishi, A. Yoshioka, Y. Shibuya and T. Nitta, "Charge accumulation on spacer surface at DC stress in compressed SF₆ gas", Gaseous Dielectrics III, Edition Pergamon, New York, USA,1982.
- [73]. T. Jing and P. H. F. Morshuis, "Evaluation of Fieldsteering Techniques in GIS with Respect to Surface Charge Accumulation", Proc. of 4th Int. Conf. on Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics, Sestri Levante, Italy, 1992.
- [74]. R.S. Sigmond and M. Goldman, "Corona discharge physics and applications, Electrical breakdown and discharges in gases, Part B", NATO ASI series B89, 1989.
- [75]. E. Francke, S. Robert and J. Amouroux, "Hydrodynamic and electrical characterization of a corona discharge plasma reactor", Journal of High Temperature Material Processes, Vol. 4, 1999.
- [76]. M. Dhainaut, E. Odic, M. Goldman, A. Goldman and C. Karimi, "Dependence of the oxidation properties of a dielectric barrier discharge in air on the plasma and gas temperature", 8th International symposium on high pressure low temperature plasma chemistry, 2002.
- [77]. G.E. Georghiou, R. Morrow and A.C. Metaxas, "The theory of shortgap breakdown of needle point–plane gaps in air using finitedifference and finiteelement methods", J.Phys. D: Appl. Phys., Vol. 32, 1999.
- [78]. M. Abdel Salam, H. Singer , A. Ahmed "Effect of the dielectric barrier on discharges in non uniform electric fields", J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 34, 2001.
- [79]. R. A. Fouracre, F. A. Twema, S. J. MacGregor and M. J. Given, "The influence of charge on surface flashover", 11th Int. Symp. on High Voltage Engineering., Vol. 3,1999.
- [80]. I. Gallimberti, I. Marchesi and L. Niemeyer, "Streamer corona at an insulating surface", Proc. of 7th Int. Symp. on High Voltage Engineering., Dresden, Germany, 1991.
- [81]. I. Ndiaye, "Étude de l'apparition et de la propagation de décharges couronnes à la surface de la glace", Maitrise, Université du Québec à Chicoutimi, 2003.
- [82]. N. L. Allen, B. H. Tan, "Initiation of positive corona on insulator surface". Proc. Of the 12th Int. Symp. on High Voltage Engineering., Bangalore, India, Vol. 3, 2001.
- [83]. N. L. Allen, P. N. Mikropulos, "Streamer propagation along insulating surfaces in air", IEEE Trans. Electr. Insul., Vol. 6, 1999.
- [84]. M. Akyuz, V. Cooray, T. G. Gustavsson, S. M. Gubanski, "Positive streamer discharge along insulating surface", IEEE Trans. Electr. Insul., Vol. 8, 2001.
- [85]. M. Farzaneh and I. Fofana, "Experimental study and analysis of corona discharge parameters on an ice surface", J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 37, 2004.

- [86]. H. F. A. Verhaart, A. J. L. Verhage, "Insulator flashover in SF6 gas", Kema Scientific and Technologic Reports, Vol. 6, 1988.
- [87]. S. Gubanski, "Diagnostic Methods for Outdoor Polymeric Insulators", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 14, 2007.

CHAPITRE II.

Modélisation et Techniques Expérimentales

II.1. Introduction:

Différentes méthodes de modélisation et d'élaboration, solide et chimique, sont utilisées pour la réalisation d'un système d'isolation électrique [1-2]. Les performances de ces systèmes dépendent des théories de modélisation d'une part [3] et du type de matériaux d'autre part [4-5].

Nous exposons dans ce chapitre les techniques d'élaboration et les procédures de mise en œuvre des échantillons utilisés. Les différentes testes expérimentaux de vieillissement dans deux environnement sec et humide seront exposés. De même les techniques de caractérisations utilisées MEB, DRX, EDS et TFIR sont aussi décrits dans ce chapitre.

La deuxième partie théorique est consacrée à la modélisation et l'amélioration d'un modèle de claquage superficielle d'isolation dans lequel on tient compte du type de matériaux utilisé.

Partie A : Techniques Expérimentales:

II.2. Matière première :

Les matériaux utilisés sont le PVC et le PRC comme matrice d'isolation, et l'oxyde de titanate de barium ($BaTiO_3$) comme charge. Le PVC est fourni par le Laboratoire de génie des polymères Sétif et le PRC par la société ENICAB de BISKRA.

II.2.1. Le polyéthylène réticulé chimiquement (PRC):

II.2.1.1 Mise en œuvre du PRC:

Le PRC est obtenu à base de polyéthylène (PE). Le procédé le plus utilisé consiste à incorporer du peroxyde de dicumyl (Figure II-1) à une teneur de 2% dans le PE, avant ou pendant l'extrusion puis à soumettre le mélange à une température supérieure à 150°C sous une pression de vapeur d'eau ou d'azote.

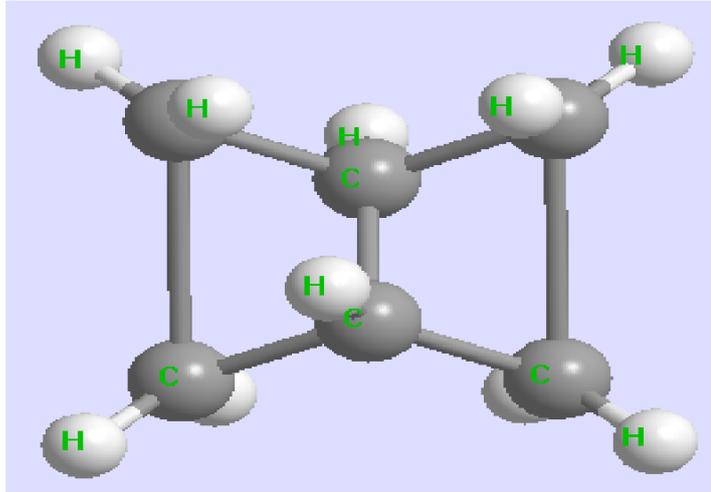


Figure II.1: *Molécule du PRC [6].*

Le taux de réticulation est caractérisé par le nombre des pontages : il est évalué par des méthodes chimiques ou des essais mécaniques. Le PRC a une morphologie sphérulitique semi-cristalline. L'unité morphologique est le sphérulite. C'est un corps polyédrique, généré à partir d'un noyau et enveloppé par une matrice amorphe [7-8].

II.2.1.2 Avantages et inconvénients de l'isolation en PRC :

Le PRC présente les avantages suivants :

- ✓ Pertes diélectriques extrêmement faibles et quasi indépendantes de la température;
- ✓ Bonne étanchéité à l'eau ;
- ✓ Forte résistance d'isolement ;
- ✓ Meilleure conductivité thermique;
- ✓ Haute rigidité diélectrique ;
- ✓ Température de fonctionnement élevée (90°C en service normal) ;
- ✓ Bonne tenue en court-circuit (à 250°C).

Toutefois le PRC présente certains inconvénients par rapport aux polyéthylène basse densité (PEBD) et polyéthylène haute densité (PEHD) [7]:

- ✓ **Filtrage plus difficile:** au cours de la fabrication, on impose un filtrage permettant d'éviter les inclusions et les protubérances et d'éliminer certaines particules telles que les fibres de verres.
- ✓ **porosité et teneur en eau plus importantes:** Avec le meilleur procédé de réticulation sèche, la teneur en eau atteint dans le PRC plus de 100ppm, alors que la quantité d'eau maximale admise dans les câbles HT à isolation PE est de 10ppm [9].

II.2.2. Le Polychlorure de vinyle (PVC) :

II.2.2.1 Formulation et mise en œuvre du PVC :

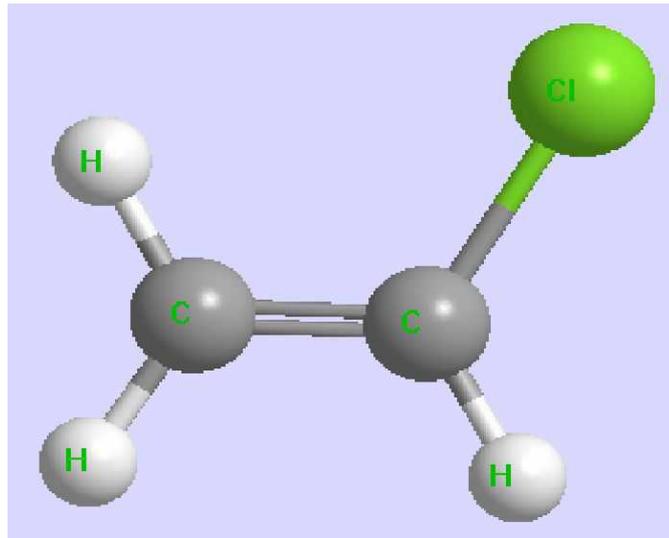


Figure II.2: Molécule de polychlorure de vinyle (PVC).

Le processus de polymérisation consiste à souder bout à bout en une longue chaîne un grand nombre de molécules identiques du produit de base (CH_2Cl). Cet assemblage forme des molécules géantes ou des macromolécules constituant un nouveau produit appelé (polymère) Fig.II.3. Cette polymérisation se produit sous l'effet d'une température et d'une pression élevées ainsi que sous l'influence d'un catalyseur éventuel. Ce processus de polymérisation est détaillé dans la référence [10]:

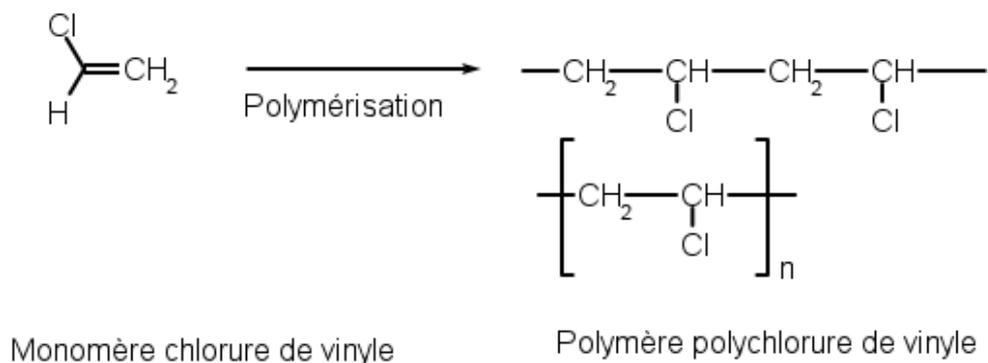


Figure II-3 : Polymérisation du PVC.

II.2.3. Comparaison des propriétés électriques des polymères:

	$\rho(\Omega.m)$	ϵ_r	Tg δ	Rigidité électrique (Kv/m)
EPDM (éthylène-propylène-diène monomère)	$\geq 10^{12}$	3-3.67	≥ 0.002	20-30
PVC	10^{16}	3.4	0.0001	37
PRC	10^{12}	2.5	0.0003	55-70

Tableau II-1 : Comparaisons des paramètres électriques.

II.2.4. L'oxyde de titanate de baryum (BaTiO_3):

C'est au milieu des années 1940 que Wul et Goldman ont mis en évidence la très grande permittivité diélectrique (plusieurs milliers) du BaTiO_3 [11], dont les propriétés ferroélectriques ont été étudiées par la suite par d'autres chercheurs. Le composé BaTiO_3 possède une structure de type perovskite ayant une symétrie cubique [12].

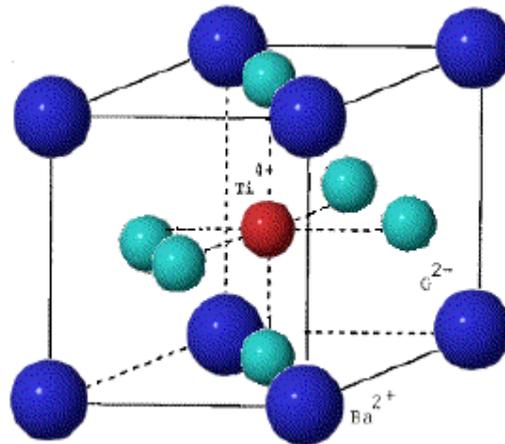


Figure II.4 : Structure de BaTiO_3 .

En particulier les dérivés du titanate de baryum BaTiO_3 sont utilisés dans l'industrie de la microélectronique. Ces propriétés piézoélectriques et pyroélectriques remarquables ont en effet permis leur développement en tant que matériaux pour condensateurs, actionneurs et capteurs [13]. La piézoélectricité est la propriété que possèdent certains corps de se polariser électriquement sous l'action d'une force mécanique (effet direct) et réciproquement, de se déformer lorsqu'on leur applique un champ électrique (effet inverse).

Dans le cadre de cette thèse, BaTiO_3 rentre comme charge au PVC et PRC dans les essais expérimentaux des PVC et PRC afin d'améliorer les propriétés diélectriques des deux isolants.

II.3. Mise en œuvre expérimentale:

II.3.1 Préparation des échantillons de PVC:

Pour préparer un échantillon de PVC, on suit les étapes suivantes :

□ **1^{ère} étape:**

pour un échantillon de **100 g** de PVC pure on ajoute :

- **33g** de DOP (Di-Octyle Phthalate) qui est un plastifiant d'une structure cristalline ayant la formule suivante : $\text{C}_{24}\text{H}_{33}\text{O}_4$.
- **2.5g** de Barium-Zinc stabiliser qui est un stabilisant complexe avec une bonne stabilité thermique.
- **0.25g** de lubrifiant (Acide stéarique).

Pour **80 g** du mélange précédent, on ajoute le **BaTiO₃** dans les proportions suivantes.
Nous obtenons les échantillons testes pour obtenir les pourcentages suivants :

	Le mélange	BaTiO₃
Echantillon (1)	80 g (100%)	0 g (0%)
Echantillon (2)	76 g (95%)	4 g (5%)
Echantillon (3)	72 g (90%)	8 g (10%)
Echantillon (4)	68g (85%)	12g (15%)
Echantillon (5)	64g (80%)	16g (20%)

Tableau II-2: Les proportions des échantillons en PVC.

2^{ème} étape: La formulation des cinq mélanges est malaxée dans un mélangeur à deux cylindres Fig.II.5, durant 20 minutes, à la température de 150°C. Le refroidissement a été effectué à l'air libre. A la fin de cette opération on obtient des films d'une épaisseur de 0.03mm. La couleur blanche des films est due à la couleur du BaTiO₃, sinon la couleur des films du PVC vierge est transparente Fig II.6 .



Figure II.5: Mélangeur à 2 cylindres (Rodolfo Comercio) 1977.



Figure II.6: Films de PVC vierge et chargé avec du BaTiO₃.

II.3.2. Préparation des échantillons de PRC:

Le PRC utilisée est sous forme de grains blancs (Fig.II.7) près à l'emploi sans aucun adjuvant. C'est la matière première de la câblerie de BISKRA (ENICAB).

- **1^{er} étape :** On prend 60g comme masse correspondant à 100% du PRC pur ; puis on ajoute le BaTiO₃ comme charge au pourcentage suivant : 5%,10%,15%,20% (voir tableau II.3).

	PRC	BaTiO ₃
Echantillon (1)	60 g (100%)	0 g (0%)
Echantillon (2)	57 g (95%)	3 g (5%)
Echantillon (3)	54 g (90%)	6 g (10%)
Echantillon (4)	51 g (85%)	9 g (15%)
Echantillon (5)	48g (80%)	12g (20%)

Tableau II-3: Les proportions des échantillons en PRC.

Tout les échantillons seront mis ensuite dans un bicher et mélangés à l'acéton comme solvant (propanone dimethylctone piroacéticéther). Sa formule chimique est C₃H₆O.

Les échantillons sont ensuite déposés dans un four sous une température de 40°C pendant trois heures pour que le solvant s'évapore et la poudre de BaTiO₃ colle aux grains du PRC.

- **2^{ème} étape :** On sèche les échantillons, on les introduits dans une presse pour obtenir des films et pour bien mélanger le PRC et le BaTiO₃ (Fig.II.8).

Les films de PRC ont été moulés à l'aide d'une presse (Fig.II.9) portée à une température de 180°C et une pression de 300 bars (conditions de réticulation). Après la fabrication des films, nous avons découpé des éprouvettes circulaires de 7.5cm de diamètre et de 0.04mm d'épaisseur pour effectuer les essais électriques.



Figure II.7: Les grains de PRC.



Figure II.8: Films de PRC vierge et avec BaTiO₃.



Figure II.9 : Presse utilisée pour la préparation des films de PRC.

II.3.3. Vieillessement des échantillons sous contrainte thermique:

Les films du PVC et PRC sont découpés en échantillon de 15cm^2 . Après cette opération on a mis les échantillons vierges et les échantillons dopés au BaTiO_3 dans un four électrique pendant 200 heures, à une température de $100\text{ }^\circ\text{C}$ selon la norme international CEI 60502-2 pour voir l'influence de BaTiO_3 sur les propriétés diélectriques et sa durée de vie.

II.3.4. Vieillessement des échantillons sous la contrainte d'humidité:

Les films de PVC et PRC sont immergés dans l'eau à une température ambiante pendant 72 heures. On prélève les poids des échantillons avant et après l'immersion pour constater le changement apporté et prélever par la suite le taux d'absorption d'eau.

II.4. Mesure par impédance mètre :

L'appareil utilisé pour effectuer des mesures diélectriques est un impédancemètre du type WAYNE KERR 6420 ayant une précision de **0.05%** (Fig.II.10).



Figure II.10: Impédance mètre (WAYNE KERR 6420).

Cet appareil est utilisé pour caractériser l'évolution des isolants. L'échantillon est mis entre deux électrodes et on applique une différence de potentiel entre ces électrodes de 1V comme le montre la figure II.11.

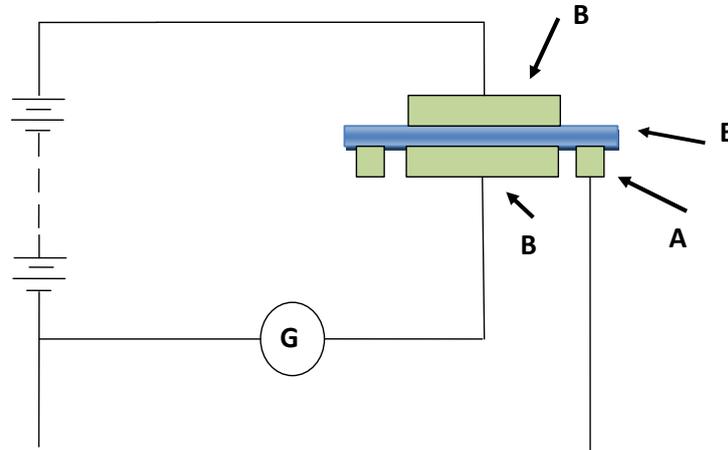


Figure II.11: Branchement type des électrodes de garde pour la mesure de la résistance transversale.

Tel que :

a : est une électrode de garde, b électrodes de mesures et e l'éprouvette qu'on veut mesurer.

Cet appareil donne les valeurs de la résistance série et parallèle du circuit équivalent d'un diélectrique (Fig II.13), la capacité (série et parallèle), le facteur de perte $\text{tg}\delta$...etc. ainsi, dans un diélectrique imparfait, la polarisation est due à des mécanismes de déformation de la répartition des charges électriques sous l'influence du champ électrique.

Dans un champ électrique alternatif, cette polarisation ne suit pas le champ d'une façon instantanée. Cette relaxation diélectrique induit une perte d'énergie. Un tel condensateur est équivalent à un circuit comportant une résistance en parallèle avec une capacité (Fig. II.13).

Le courant alternatif complexe I résultant de l'application de la tension alternative U aux bornes d'un condensateur plan rempli de diélectrique s'écrit :

$$I = I_c + I_p \quad (\text{II.1})$$

Avec

I_c : courant de charge.

I_p : courant de fuite.

Les courants I_c et I_p sont donnés par les relations suivantes :

$$I_c = j\omega C_s U \quad (\text{II.2})$$

$$\text{Et } I_p = \frac{U}{R} \quad (\text{II.3})$$

Avec

ω : pulsation du courant alternatif.

C_s : capacité d'un condensateur parfait.

R : résistance du diélectrique réel.

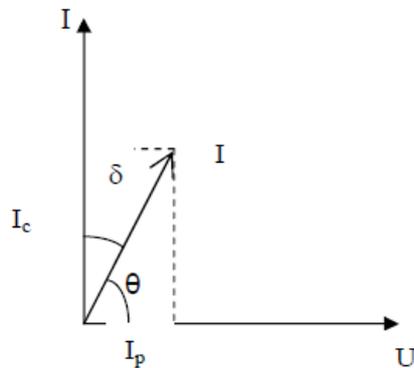


Figure II.12: Diagramme de Fresnel pour un condensateur contenant un diélectrique.

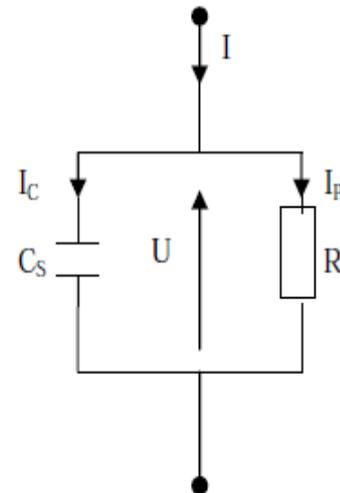


Figure II.13 : Circuit équivalent d'un diélectrique en parallèle.

En pratique, I est proportionnel à $C_0 U$ et s'écrit :

$$I = j\omega(\epsilon_r' + j\epsilon_r'')C_0 U \tag{II.4}$$

Avec

C_0 : capacité du condensateur sous vide.

La polarisation du point de vue macroscopique est donc caractérisée par l'apparition de deux minces couches de charges électriques de signes opposés, chacune sur une face du matériau. La relaxation est due en fait, au déphasage entre le déplacement électrique D et le champ électrique E d'où :

$$D = \epsilon E \tag{II.5}$$

Où : ϵ est la permittivité complexe absolue du diélectrique définie comme :

$$\epsilon = \epsilon_0 \times \epsilon_r \tag{II.6}$$

Avec ϵ_0 est la permittivité du vide ($\epsilon_0 = 8,85 \cdot 10^{-12}$ F/m).

ϵ_r est la permittivité relative complexe du diélectrique définie comme :

$$\epsilon_r = \epsilon_r' - j\epsilon_r'' \tag{II.7}$$

ϵ_r' : Permittivité relative du diélectrique ou la constante diélectrique en courant alternatif.

ϵ_r'' : Indice de pertes diélectriques.

Dans le cas d'un diélectrique parfait, $\epsilon_r = \epsilon_r'$ est le quotient de la capacité C_s entre deux électrodes, supposées noyées dans ce diélectrique, par la capacité C_0 de la même configuration d'électrodes

dans le vide :

$$\varepsilon_r = \frac{C_p}{C_0} \quad (\text{II.8})$$

La séparation des charges positives et négatives ainsi produites entraîne l'apparition de dipôles électriques qui tendent à s'aligner dans la direction du champ électrique.

Toutefois, un déphasage subsiste entre la direction du champ électrique et l'établissement des dipôles, entraînant une dissipation d'énergie responsable des pertes diélectriques caractérisées par $\text{tg}\delta$. On calcule ce facteur en faisant le rapport entre la partie réelle et la partie imaginaire de l'impédance équivalente du diélectrique :

$$\text{tg}\delta = \frac{I_p}{I_c} = \frac{\varepsilon_r''}{\varepsilon_r'} = \frac{1}{RC_s\omega} \quad (\text{II.9})$$

II.5. Techniques de caractérisation:

II.5.1. Diffraction des rayons X :

Des analyses par diffraction des rayons X, sur matériau massif, ont été menées afin de permettre l'identification des phases et la détermination des paramètres cristallins.

L'échantillon est plan, son plan de référence passe par l'axe du diffractomètre et peut tourner autour de cet axe à une vitesse angulaire constante et réglable ω . La fente (F) d'entrée d'un compteur se déplace sur le cercle (c) à une vitesse 2ω .

Les mouvements sont réglés de telle façon que si l'angle d'incidence du faisceau sur l'échantillon est nul, la source (S), l'axe (C) et la fente (F) se trouvent rigoureusement dans le plan de référence SCP du diffractomètre, lorsque l'échantillon se présente sous l'angle d'incidence θ , la fente du détecteur se trouve donc en position 2θ [14,15] (voir Fig.II.14 et II.15).

Lorsque l'angle d'incidence θ correspond à un angle de Bragg pour la longueur d'onde fixée, on enregistre un pic de diffraction dont on mesure l'intensité. La méthode de poudre fournit une série de couples (θ, I) , la longueur d'onde étant connue, on peut donc convertir directement l'angle θ en distance inter-réticulaire par la formule suivante :

$$d_{hkl} = n\lambda / (2 \sin\theta) \quad (\text{II-6})$$

λ : Longueur d'onde du faisceau de rayons X incident.

n : Ordre de diffraction.

θ : Angle de diffraction.

d_{hkl} : Distance inter-réticulaire caractérisant la famille de plans repérée par les indices h,k,l .

Le rayon diffracté est transmis sous forme de signal qui est amplifié et enregistré sous forme d'un diagramme $I = f(2\theta)$, la figure II.15.

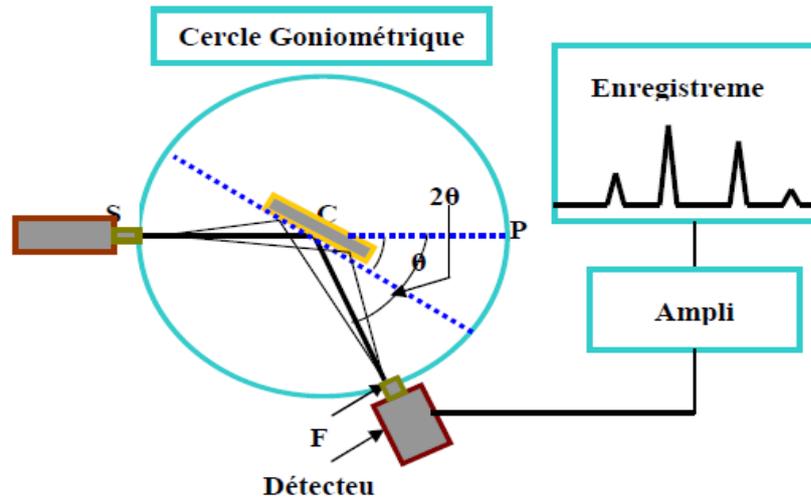


Figure II.14: Principe du diffractomètre à poudre.

Les diagrammes de diffraction obtenus sont exploités à l'aide du logiciel EVA, qui permet notamment d'utiliser la banque de données cristallographiques JCPDS pour identifier les phases présentes dans l'échantillon [16].

La structure cristallographique des échantillons ont été étudiées à l'aide d'un diffractomètre standard (SOLUTIONS BRUKER AVANCE X-RAY). Les diagrammes de diffraction ont été réalisés dans la gamme 2θ de 20 à 80° avec une vitesse de balayage de $2^\circ/\text{mn}$ et un incrément d'angle de 0.02° .

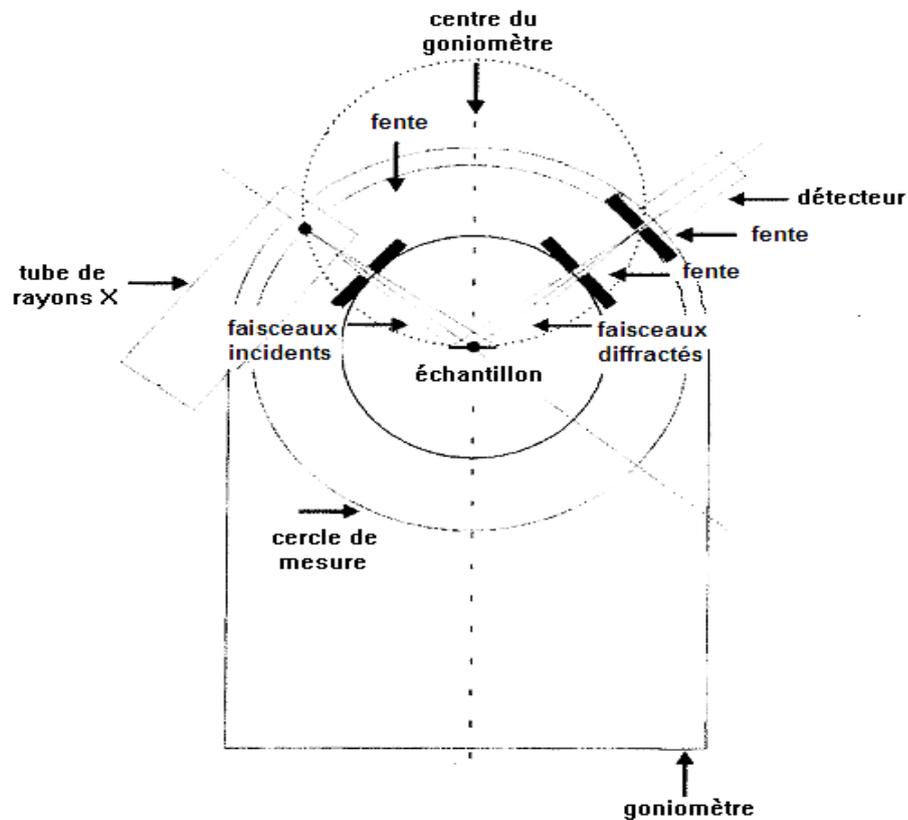


Figure II.15: Diffractomètre Bruker AVANCE X-RAY.



Figure II.16: *Diffraction des rayons X Bruker AVANCE X-RAY.*

II.5.2. IFR :

L'infrarouge est le domaine classique d'étude des molécules organiques donnant des informations sur les groupements fonctionnels présents dans une molécule. Les modes de vibration d'un groupement chimique dépendent fortement du reste de la molécule; chaque molécule produit un spectre d'absorption qui lui est caractéristique [17]. Lorsque la longueur d'onde (l'énergie) apportée par le faisceau lumineux est voisine de l'énergie de vibration de la molécule, cette dernière va absorber le rayonnement et on enregistrera une diminution de l'intensité réfléchiée ou transmise.

Le domaine infrarouge entre 4000 cm^{-1} et 400 cm^{-1} ($2.5\text{--}25\mu\text{m}$) correspond au domaine d'énergie de vibration des molécules.

Toutes les vibrations ne donnent pas lieu à une absorption, cela va dépendre aussi de la géométrie de la molécule et en particulier de sa symétrie. Pour une géométrie donnée on peut déterminer les modes de vibration actifs en infrarouge grâce à la Théorie des Groupes. La position de ces bandes d'absorption va dépendre en particulier de la différence d'électronégativité des atomes et de leur masse.

Par conséquent à un matériau de composition chimique et de structure donnée va correspondre un ensemble de bandes d'absorption caractéristiques permettant d'identifier le matériau.

L'analyse s'effectue à l'aide d'un spectromètre à transformée de Fourier qui envoie sur l'échantillon un rayonnement infrarouge et mesure les longueurs d'onde que le matériau absorbe et les intensités de l'absorption. La figure II.17 décrit le schéma d'un spectromètre à transformée de Fourier.

Le faisceau infrarouge provenant de la source A est dirigé vers l'interféromètre de Michelson qui va moduler chaque longueur d'onde du faisceau à une fréquence différente. Dans l'interféromètre le faisceau lumineux arrive sur la Séparatrice. La moitié du faisceau est alors dirigée sur le miroir fixe, le reste passe à travers la séparatrice et est dirigé sur le miroir mobile. Quand les deux faisceaux se recombinaient, des interférences destructives ou constructives apparaissent en fonction de la position du miroir mobile. Le faisceau modulé est alors réfléchi des deux miroirs vers l'échantillon, où des absorptions interviennent. Le faisceau arrive ensuite sur le détecteur pour être transformé en signal électrique.

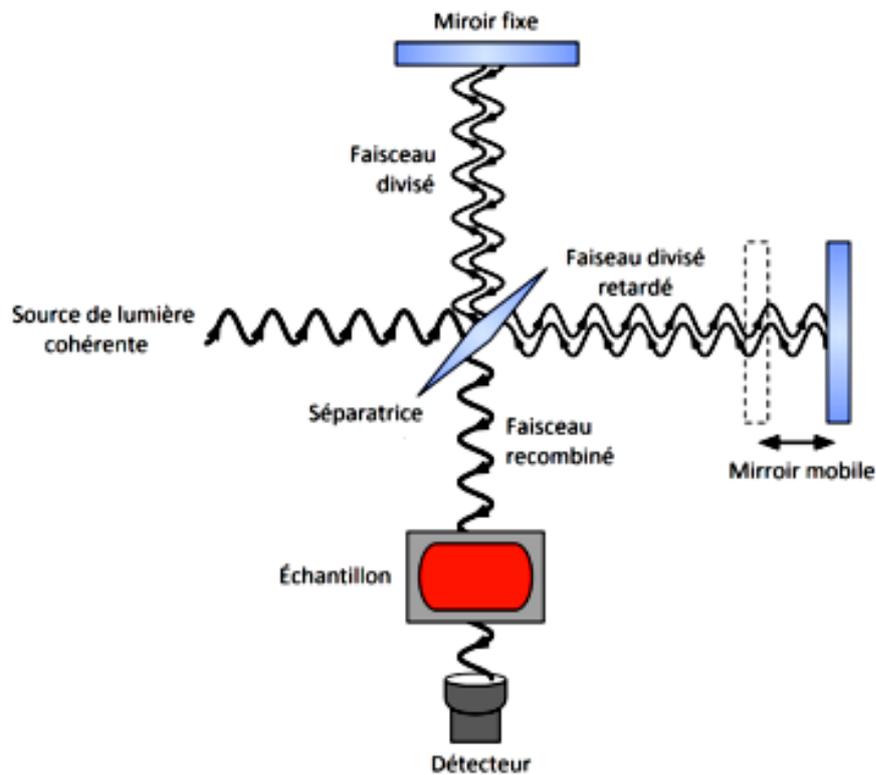


Figure II.17: Schéma d'un spectromètre à transformée de Fourier.

Le signal du détecteur apparaît comme un interférogramme (Figure II.18), c'est à dire une signature de l'intensité en fonction de la position du miroir. L'interférogramme est la somme de toutes les fréquences du faisceau.

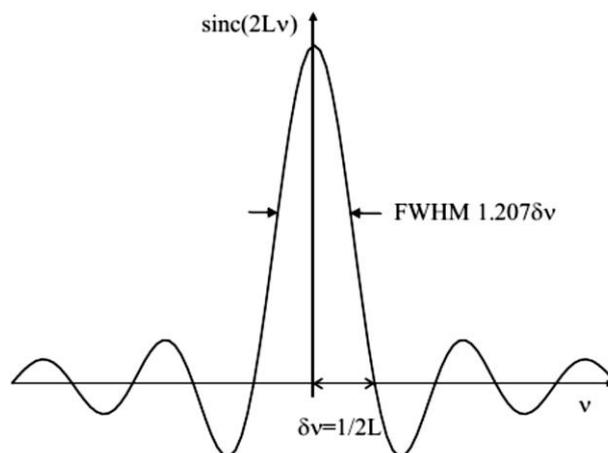


Figure II.18: *Interférogramme en sortie du détecteur.*

Cet interférogramme est ensuite converti en un spectre infrarouge par une opération mathématique appelé transformé de fourier. Le domaine qui représente le plus grand intérêt est très limité et s'étend de 4000 à 660cm^{-1} , les molécules absorbent l'énergie de ces radiations en modifiant leurs énergies de vibration [18].

L'absorption de l'infrarouge s'observe pour des complexes métalliques liés par covalence qui sont généralement actifs dans la région infrarouge de grande longueur d'ondes.

Les analyses FT-IR des échantillons est effectués par un dispositif de JASCO FT/IR4200 (figure II.19) avec la gamme de fréquences de 600 à 4000 cm^{-1} et à $0,5\text{ cm}^{-1}$ en tant que résolution maximale.



Figure II.19: *Spectromètre IR, type JASCO FT/IR-4200 équipé par l'ATR.*

II.5.3. Microscopie électronique à balayage :

C'est une technique basée sur la détection des électrons secondaires collecté après bombardement de l'échantillon. Elle permet d'obtenir une image à haute résolution et à grande profondeur de champ. La microscopie électronique à balayage apporte des informations sur la

forme et la taille des grains. Cette technique permet d'estimer la distribution granulométrique, la taille moyenne des grains après le frittage et d'évaluer qualitativement la présence de porosité. Les micrographies sont réalisées à l'aide d'un Microscope Electronique à Balayage (MEB, JEOL JSM modèle 7001F).

La figure II. 20 est une coupe schématique d'un microscope électronique à balayage. L'ensemble des éléments permettant d'obtenir un faisceau d'électrons focalisé au niveau de l'échantillon constitue la colonne électronique [19,20].

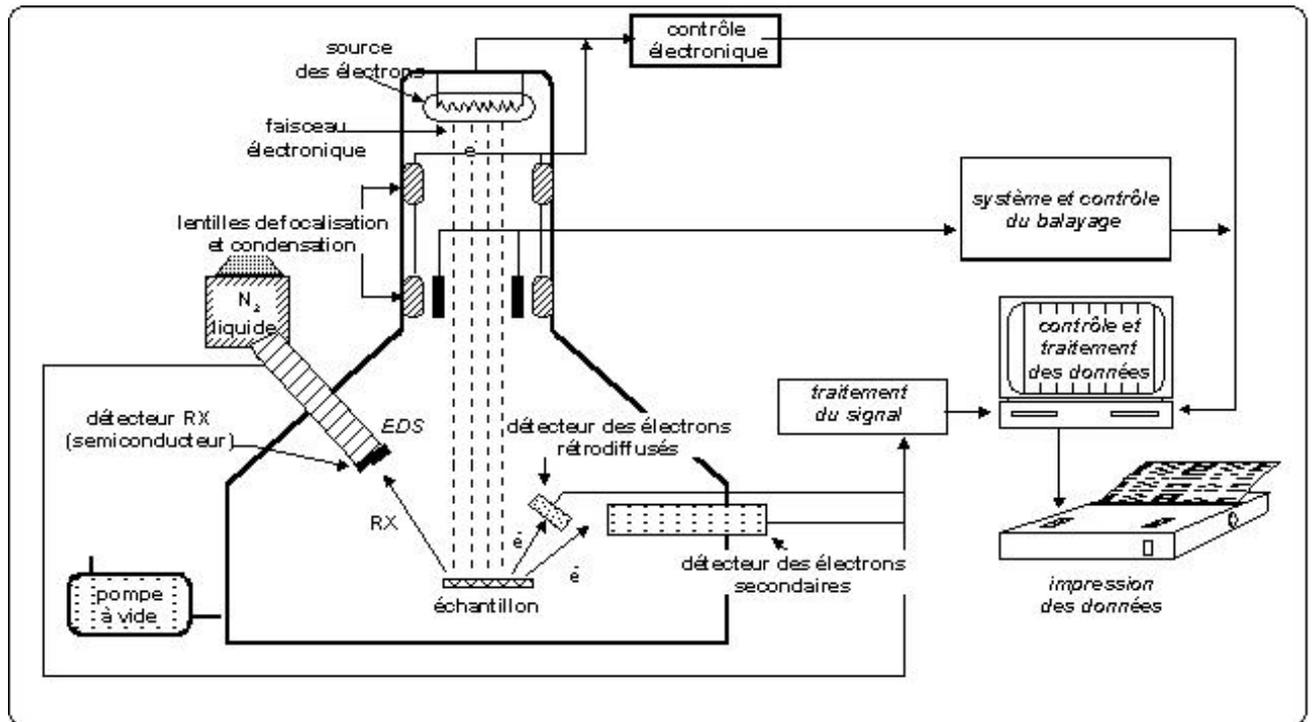


Figure II.20: Schéma du MEB.

En plus le microscopie électronique à balayage (MEB, JEOL JSM modèle 7001F) est équipé d'un analyseur E.D.S.

En complément, des mesures EDX (Energy Dispersive X-ray) ont également été réalisées par Micro-analyse EDS (composition chimique), KeveX (132 Kev) sur nos échantillons. Cette technique consiste à utiliser les électrons du faisceau MEB qui possèdent une énergie très supérieure aux énergies de liaison des électrons.

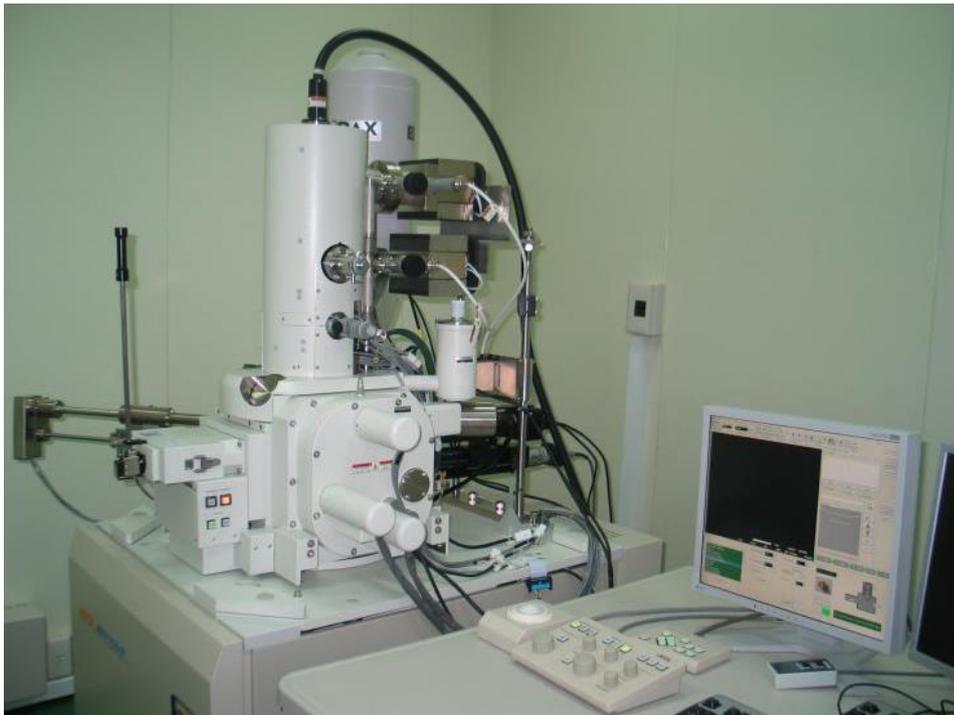


Figure II.21: *Microscope Electronique à Balayage (MEB, JEOL JSM modèle 7001F).*

Ces électrons, en traversant l'échantillon, vont engendrer plusieurs effets. L'un des plus importants consiste en une émission de rayons X, caractéristique de l'atome. Le spectromètre de dispersion en énergie EDX va convertir l'énergie du photon en paires électron-trou. Ces paires électron-trou permettent le passage d'un courant électrique sous forme d'une impulsion. L'amplitude de ce courant est proportionnelle à l'énergie de chaque photon, ce qui nous permet donc de retrouver la nature des éléments constituant le matériau. Ces mesures ont montré que ces échantillons étaient composés essentiellement des éléments d'oxygène (O), carbone (C), baryum (Ba), titanate (Ti) et Hydrogène (H). L'or (Au) provient du support de porté échantillon nécessaire pour réaliser cette mesure. A l'aide du logiciel microanalyst [Micr] nous avons déterminé les proportions de ces éléments.

Partie B : Modélisation:

II.6. Principaux modèles:

Nous exposons dans cette partie les principaux modèles rencontrés dans la littérature, et qui décrit le comportement des isolateurs sous contrainte électrique.

Pour adapter plus rationnellement les isolateurs d'un ouvrage à la civilité de pollution d'un site ou pour surveiller la qualité de l'isolement et donc d'éviter des éventuelles défaillances, il est impératif de disposer de modèle permettant de prévoir le contournement des isolateurs.

C'est dans cette optique que plusieurs modèles furent développés afin d'établir le critère

d'établissement de l'arc en continu, pour ensuite être étendu au cas d'une tension alternative. A cet effet, il existe des modèles statiques tels que le Modèle d'Obenaus, Modèle de Neumarker, Modèle d'Alston, Zoedziowski et Modèle de Rizk. Des modèles expérimentaux tels que le Modèle de Claverie et Porcheron, Modèle de Rao et Gopal, Modèle de J. Danis, Modèle de la couche mixte, et Modèle du disque circulaire ; comme il existe des modèles dynamiques tels que ceux de Rizk, Modèle de Anjana et Lakshminarasimha, Modèle de Sundararajan et Gorur.

II.7. Modèle d'Obenaus:

C'est Obenaus [21,22], c'est le leader chercheur qui a fait les premières analyses quantitatives des phénomènes de contournement des surfaces isolantes planes, recouvertes d'une couche polluante, sous tension continue. En effet, il a établie un modèle type circuit électrique équivalent constitué d'un arc de longueur x en série avec une résistance R_p (figure II.22), il en a déduit la tension d'arc:

$$V_{arc} = \frac{xN}{I^n} \quad (II-7)$$

Où I est le courant de fuite, n et N sont les constantes de la caractéristique statique de l'arc.

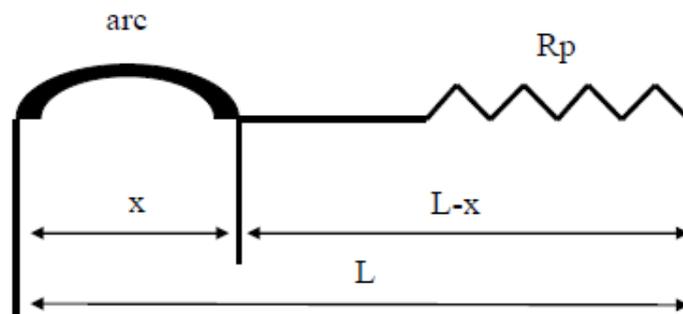


Figure II.22: *Modèle d'Obenaus [21].*

L représente la longueur de fuite totale

Les valeurs des paramètres n et N dépendent du milieu dans lequel amorcera une décharge. Elles varient selon les auteurs [21,23]. De façon générale:

$$0.40 \leq n \leq 1 \quad (II.8)$$

$$3 \leq N \leq 500 \quad (II.9)$$

Sur la base des mesures expérimentales, Ghosh et al [24] ont proposé des valeurs différentes pour les constantes N et n caractérisant l'équation de la décharge selon la nature de l'électrolyte utilisé. Ils sont donnés dans le tableau II.4.

Electrolyte	N	N
NaCl	360	0.59
CaCl ₂	461	0.42
FeCl ₃	270	0.66
CuSO ₄	450	0.49

Tableau II-4 : Constantes A et n selon Ghosh et al [24].

II.8. Mécanisme de propagation:

II.8.1. Propagation par ionisation:

Wilkins et Al Baghdadi ont proposé un mécanisme de propagation basé sur l'ionisation et le déplacement discontinu du pied de la décharge [25]. Cependant, Qing Yang , Rui Wang décrivent le mécanisme de propagation successive de l'arc sous forme d'un canal de plasma [26], comme le montre la figure II.23. Le gradient de tension du pied d'arc a un effet décisif sur la formation de la nouvelle ionisation. De sorte que le critère de gradient de tension du pied de l'arc est proposé comme suit:

$$\frac{dE_{ion}}{dx} > 0 \quad (II.10)$$

où E_{ion} est le gradient de tension de la racine d'arc et x (cm) est la longueur de l'arc.

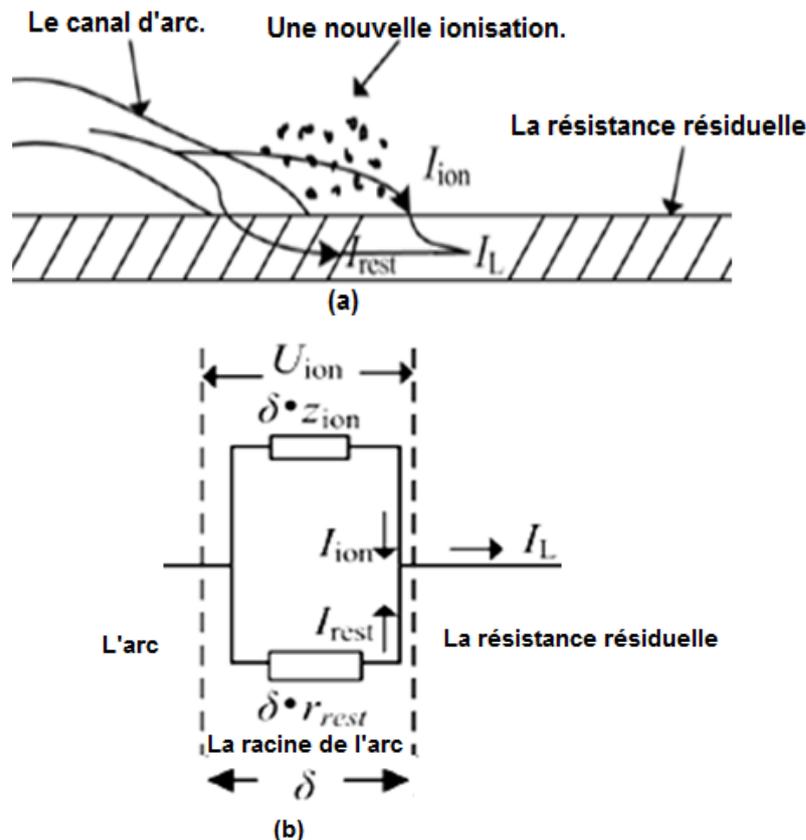


Figure II.23: Mécanisme de propagation par ionisation proposé par Qing Yang [26].

II.8.2. Propagation par force électrostatique:

A partir des observations faites sur un canal d'électrolyte, Rahal a essayé de mettre en évidence l'existence d'une force électrostatique s'exerçant sur la décharge, responsable du déplacement de l'arc. Il a démontré que du point de vue électrique macroscopique, cette force était due à la dissymétrie de la distribution du potentiel, elle même causée par le passage du courant dans le liquide couvrant la surface isolante. Cette force va provoquer la courbure de la décharge vers l'électrode de masse (Fig. II.24). [27]

Une fois les conditions critiques satisfaites, la décharge se déplacera alors vers l'électrode de masse. D'après l'auteur, l'existence de cette force implique en effet, que l'on considère la décharge comme un élément de circuit doué d'une certaine auto-consistance macroscopique et susceptible de s'étirer de façon plus ou moins élastique.

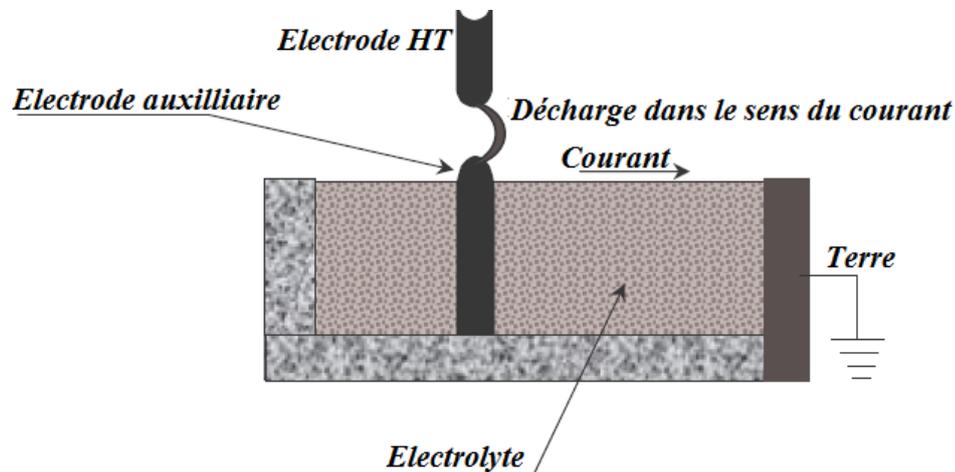


Figure II.24: Courbure de la décharge dans la direction de l'écoulement du courant mettant en évidence une force.

II.8.3. Critères de propagation de la décharge:

Tous les critères de propagation de décharge sont basés soit sur le champ électrique, soit le courant, soit la puissance ou encore l'énergie fournie par la source. Les références [28, 29] donnent les détails sur ces différents critères.

✓ Critère de Hampton

A partir d'une étude expérimentale, Hampton [30] a déterminé les conditions critiques de propagation de l'arc. En remplaçant la couche de pollution en série avec l'arc par une colonne d'électrode HT d'eau uniforme présentant une résistance linéique constante, il a pu établir que la condition nécessaire pour que le contournement se produise, est que le champ E_p dans la colonne d'eau dépasse le champ à l'intérieur de l'arc E_a :

$$E_a < E_p \quad (II.11)$$

✓ Critère de Hesketh

En supposons que l'arc en série avec la couche de pollution mouillée se modifie de façon à rendre maximal le courant qu'il tire de la source d'alimentation, Hesketh [31] a établi un critère de propagation de l'arc, exprimé par la relation:

$$\frac{dl}{dx} > 0 \quad (\text{II.12})$$

I étant le courant d'arc.

✓ **Critère de Wilkins**

En considérant qu'un système se place dans la configuration qui lui permet de dissiper le maximum d'énergie, Wilkins [32] a généralisé la condition énoncée par Hesketh et établi un critère de propagation utilisant la puissance P fournie par la source:

$$\frac{dP}{dx} > 0 \quad (\text{II.13})$$

Pour Wilkins, le mouvement de la décharge se produit lorsque la puissance P augmente avec l'élongation de la décharge. Lorsque la tension appliquée au système est constante, le critère de Wilkins se réduit à la condition établie par Hesketh.

✓ **Critère de Anjana et Lakshminarasimha**

En assimilant l'arc à une colonne de gaz en équilibre thermodynamique, Anjana et al [33] ont établi une condition nécessaire à la propagation de l'arc, basée sur des considérations énergétiques: l'énergie totale fournie W_{totale} doit être supérieure ou égale à l'énergie W_{th} nécessaire pour maintenir l'arc à sa température:

$$W_{totale} > W_{th} \quad (\text{II.14})$$

II.9. Modèle d'Obenaus modifié :

A partir des modèles présentés précédemment, nous apportons certaines modifications sur le modèle d'Obenaus [21] qui introduit des hypothèses simplificatrices tel que le circuit électrique et sur le modèle statique. On montre le degré d'influence du type du matériau sur le comportement d'un modèle mathématique représenté sous forme d'un modèle physique plan- plan utilisé.

L'analyse physique effectuée grâce aux logiciel Comsol-multiphysics vu qu'il :

- ✓ fonctionne come une interface du logiciel MATLAB; basés sur des équations aux dérivées partielles.
- ✓ il est spécialisé dans la résolution de problèmes électromagnétiques.
- ✓ il permet de prendre en compte des variétés de diélectrique.
- ✓ il permet de travailler en régime statique ou quasi-statique (50Hz).
- ✓ Enfin, il permet une modélisation rapide du problème.

Afin de comprendre la tendance des différentes caractéristiques relevées, nous avons

focalisé notre étude sur les divers matériaux isolant utilisés couramment comme isolateur. Nous relevons la tension de contournement et le courant de fuite du verre, PVC, et le PRC dans différents cas de configuration.

II.9.1. Modèle physique de simulation:

L'analyse de la répartition des charges sera, par conséquent, effectuée sur une section plane du modèle. Nous nous ramenons donc à un modèle bidimensionnel (Figure II.25).

Nous partons de l'hypothèse que la longueur D des électrodes est suffisamment élevée ($D \gg d$) ce qui permet de négliger les effets de bords.

L'approche par simulation du modèle est une suite de programmes permettant de visualiser, entre autres, les répartitions du champ et l'induction électrique. La composante normale de l'induction à la surface des conducteurs nous renseigne sur la distribution de la charge et permet donc de localiser les zones à champ maximal.

- Afin d'estimer la valeur du courant de fuite traversant la couche de pollution de conductivité γ , nous considérons le cas du modèle plan-plan, constitué de deux électrodes, l'une est reliée à la borne haute tension, l'autre est mise à la terre. En utilisant l'équation suivante déduite de la loi d'Ohm:

$$I = \gamma S E_{max} \quad (\text{II.15})$$

Le champ électrique E est calculé en tout point de la région inter-électrodes.

S est la surface traversée par le courant I .

γ est la conductivité de la couche polluante.

- La valeur de la tension de contournement est estimée à l'aide de l'équation suivante:

$$U_C = E_{max} d \quad (\text{II.16})$$

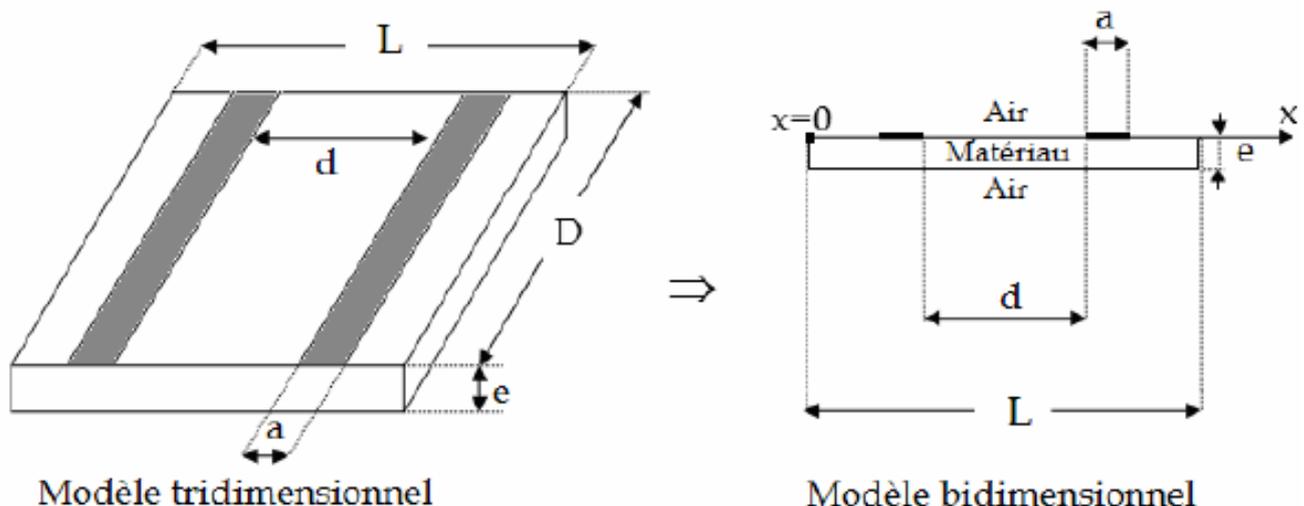


Fig. II.25: Représentation du modèle de simulation [34].

Avec

e : l'épaisseur de l'échantillon ; D : la largeur de l'échantillon ; L : la longueur de l'échantillon.

d : l'écarte entre les électrode ; a : la largeur de l'échantillon.

Un repère Ox est choisi sur le modèle, de manière à étudier le champ à la surface de séparation entre l'air et le matériau, puis dans toute la zone conductrice ou deux surfaces distinctes composent le conducteur.

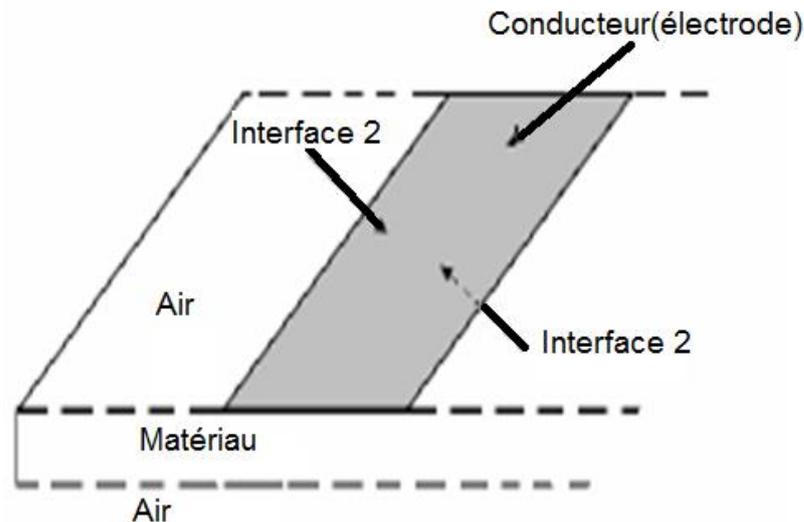


Fig.II.26: Cheminement (interface) 1 et 2, et chemins possible pour l'intégration [34].

Sur la Fig II.26, nous définissons ainsi deux chemins possible pour l'intégration:

- ❖ **Cheminement 1 (Interface 1):** Elle comprend la surface du conducteur exposée à l'air.
- ❖ **Cheminement 2 (Interface2):** Elle comprend la surface du conducteur collée sur la plaque.

II.9.2. Modèle Mathématique:

Nous considérons un isolateur plan de longueur de fuite L sur lequel naît un arc partiel de longueur x et de résistance R_{arc} . Le choix de cette représentation en deux dimensions est justifié par le fait que le phénomène de contournement dépend essentiellement des caractéristiques surfaciques de la couche de pollution.

L'isolateur est représenté par le circuit équivalent d'Obenaus qui est composé d'une résistance d'arc et d'une résistance de la couche polluante en série. Afin d'approcher les conditions de service (sévères) de celui ci :

- ✓ Nous ajoutons une capacité en parallèle avec ces résistances, représentant les charges d'espace et de polarisation susceptible de se former à la surface et l'interface isolant-couche polluante, ceci d'une part. D'autre part, on néglige l'effet résistif qui est représenté dans le modèle Obenaus par une résistance en parallèle avec la capacité.
- ✓ On négligera l'effet résistive de l'isolateur qui est représenté par la résistance en parallèle avec la capacité.

- ✓ La couche de pollution peut être modélisée par une résistance R_p en parallèle avec une capacité C . On intégrera la capacité de cette couche polluante dans la capacité de l'isolateur.

- **Representation électrique du circuit**

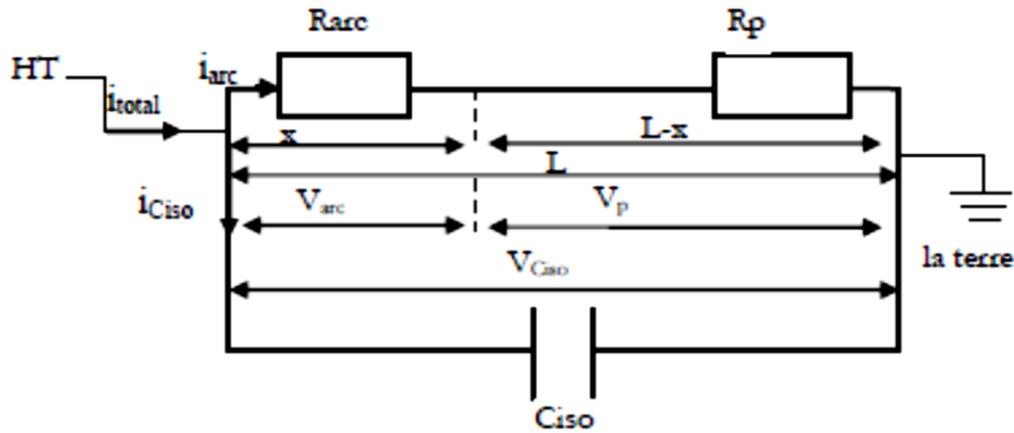


Figure II.27 : Circuit équivalent du modèle Obenaus modifié.

Où :

i_{totale} est le courant total dans l'isolateur.

i_{arc} est le courant d'arc,

i_c est le courant capacitif représentant le courant dans la capacité de l'isolateur.

Dans le cas de la configuration plan, R_p et C peuvent être exprimées de la façon suivante:

$$R_p = \rho_p \frac{(L-x)}{S_p} \quad (\text{II.17})$$

et pour calculer C on a les équations (II.18) et (II.19)

$$C_0 = \epsilon_0 * \frac{S}{e} \quad (\text{II.18})$$

$$C = \epsilon_r * \epsilon_0 = \epsilon_r * \epsilon_0 * \frac{S}{e} \quad (\text{II.19})$$

S est la section de l'armature d'un condensateur, e est l'épaisseur d'isolant ; ϵ_0 est la permittivité absolue du vide. L'impédance de C sera :

$$Z_C = \frac{1}{jC\omega} \quad (\text{II.20})$$

Ou, ω est la pulsation.

D'autre part, en considérant que l'arc est un canal cylindrique de section S , de longueur x et de résistivité ρ_{arc} , sa résistance R_{arc} sera:

$$R_{\text{arc}} = \rho_{\text{arc}} \frac{x}{S} \quad (\text{II.21})$$

D'où l'expression de l'impédance équivalente pour le cas d'une tension sinusoïdale est:

$$Z_{eq} = \frac{R_{\text{arc}} + R_p}{1 + jC\omega(R_{\text{arc}} + R_p)} \quad (\text{II.22})$$

Pour simplifier, on multiplie Eq (II.22) par le conjugué de son dénominateur

$$Z_{eq} = \frac{R_{arc} + R_p}{1 + jC\omega(R_{arc} + R_p)} * \frac{1 - jC\omega(R_{arc} + R_p)}{1 - jC\omega(R_{arc} + R_p)} \quad (\text{II.23})$$

Après développement et simplification:

$$Z_{eq} = \frac{L^2 S S_p \alpha - jL\omega \varepsilon \alpha^2}{L^2 (S_p^2) S^2 + \omega^2 \varepsilon^2 S_i^2 \alpha^2} \quad (\text{II.24})$$

Ou:

$$\alpha = S_p * \rho_{arc} * x + S_p (L - x) \quad (\text{II.25})$$

Ou:

S est la section de l'arc. S_p est la section de la couche polluante et S_i est la section de la capacité C.

- **Critère de propagation:**

Pour établir le critère de propagation, considérons le module de l'impédance du circuit équivalent correspondant à l'isolateur pollué. Ainsi, en élevant au carré le module de l'impédance Z_{eq} , on a:

$$|Z_{eq}|^2 = \frac{2B(O^2x + OH)[G + LD(Ox + H)^2]}{B + D^2(Ox + V)^2} \quad (\text{II.26})$$

Avec :

$$G = L^2 * S * S_p \quad ; \quad B = L^2 * S_p^2 * S^2 \quad ; \quad O = S_p * \rho_{arc} - S * \rho_p \quad ; \quad H = \rho_p * S * L \quad ; \\ D = \omega * \varepsilon * S_i$$

Dérivons l'expression (II.26) par rapport à x, on obtient la relation suivante:

$$\frac{d|Z_{eq}|^2}{dx} = \frac{2 * S^2 * S_p^2 * S^2 * (S_p * \rho_{arc} - S * \rho_p) * ((S_p * \rho_{arc} - S * \rho_p) * x + S * L * \rho_p)}{[L^2 * S_p^2 * S^2 + \varepsilon^2 * \omega^2 * S_i^2 * ((S_p * \rho_{arc} - S * \rho_p) * x + S * L * \rho_p)]} \quad (\text{II.27})$$

La condition nécessaire à la propagation de l'arc est telle que la variation de l'impédance soit décroissante [35]:

$$\frac{d|Z|^2}{dx} \leq 0 \quad (\text{II.28})$$

Le dénominateur est toujours positive ce qui conduit à:

$$2 * L^4 * S^2 * S_p^2 * (S_p * \rho_{arc} - S * \rho_p) * ((\rho_p * \rho_{arc} - S * \rho_p) * x + S * L * \rho_p) \leq 0 \quad (\text{II.29})$$

Cette relation peut aussi s'écrire sous la forme suivante:

$$\frac{x}{L} \leq - \frac{S * \rho_p}{(S_p * \rho_{arc} - S * \rho_p)} \quad (\text{II.30})$$

L'analyse de cette expression nous amène à distinguer trois cas:

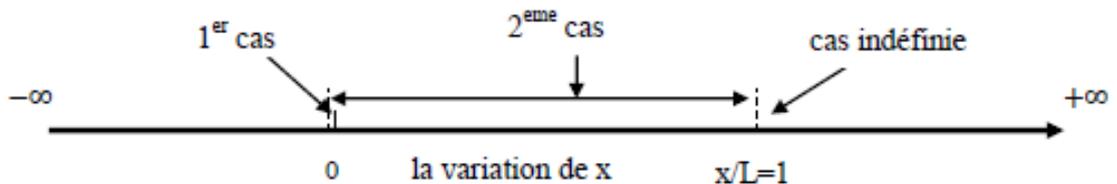


Figure II.28: L'analyse de l'expression de propagation.

a. 1 er cas:

si x est très inférieure à L on a :

$$\frac{S*\rho_P}{(S_P*\rho_{arc}-S*\rho_P)} < 0 \quad (\text{II.31})$$

Donc il n'y a pas de propagation de l'arc.

Les modules du champ au niveau de l'arc (E_{arc}) et de la couche de pollution respectivement sont exprimés par les relations suivantes :

$$E_{arc} = \frac{\rho_{arc}}{S} I_{arc} \quad (\text{II.32})$$

$$E_P = \frac{\rho_P}{S_P} I_f \quad (\text{II.33})$$

Où I_f est le courant de fuite circulant dans la couche de pollution.

Selon le circuit modèle (figure II.25), nous avons :

$$I_{arc} = I_f \quad (\text{II.34})$$

b. 2^{ème} cas :

Comme on a :

$$\frac{E_{arc}}{E_P} = \frac{\rho_{arc}*S_P}{\rho_P*S} \quad (\text{II.35})$$

Si : $0 < x/L < 1$ donc on a :

$$0 < \frac{S*\rho_P}{(S_P*\rho_{arc}-S*\rho_P)} < 1 \quad (\text{II.36})$$

C'est la condition de propagation. Si on introduit l'équation II-35 dans la condition finale de contournement, la condition de propagation devient :

$$0 < \frac{E_P*E_{arc}}{E_{arc}^2 - E_{arc}*E_P} < 1 \quad (\text{II.33})$$

c. 3^{ème} cas

Si $x/L > 1$ cas indéfini

- **Organigramme de calcul**

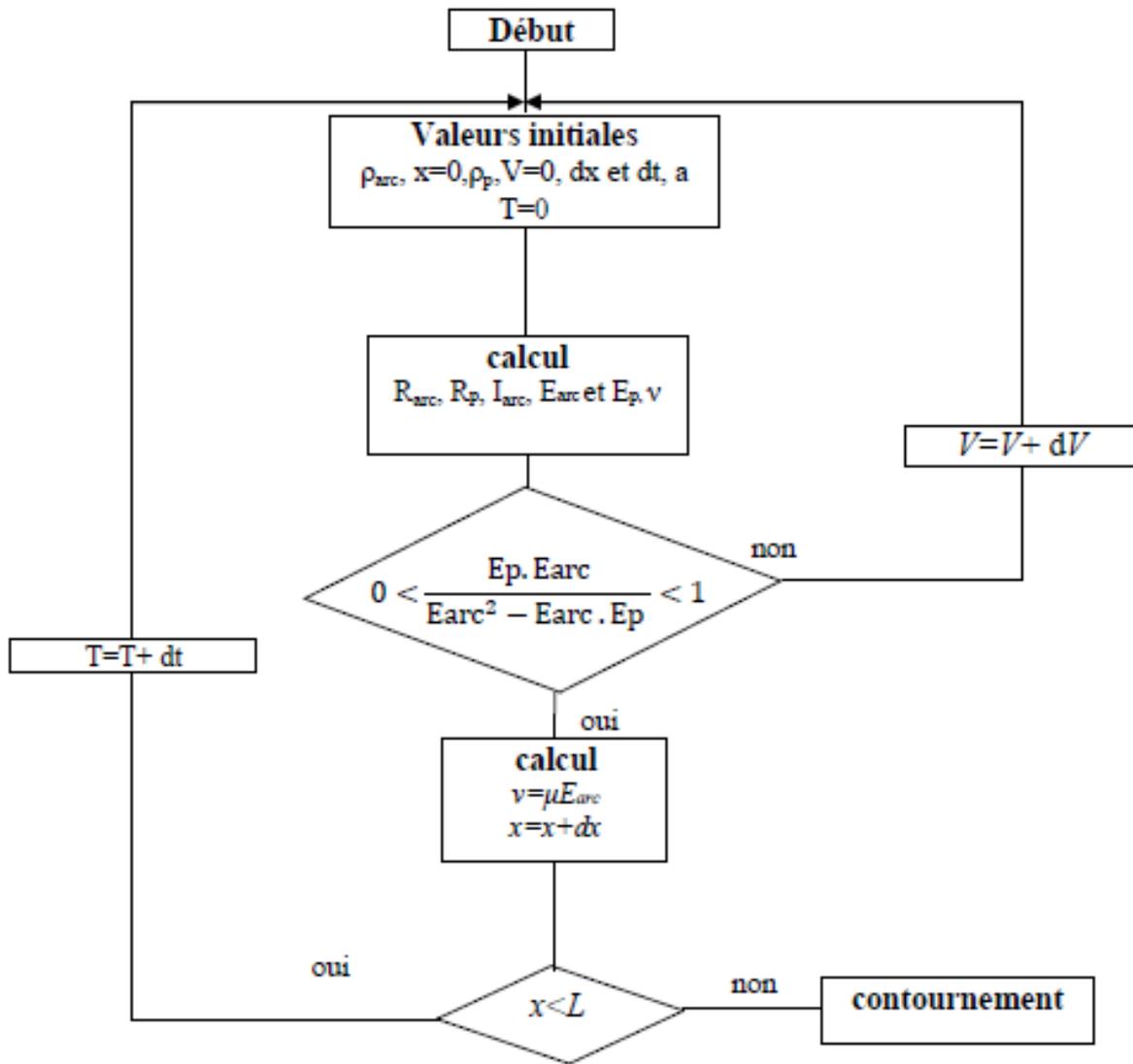


Figure II.29: Organigramme de calcul du modèle dynamique.

II.10. Conclusion:

Nous avons présenté dans ce chapitre les polymères à base de PVC et de PRC chargés au BaTiO₃ et les étapes d'élaboration de ces composites. Les procédures et les étapes de vieillissement des échantillons au laboratoire, proche aux conditions de l'isolateur en service ont été énumérées.

Les techniques de caractérisations physico-chimiques tels que l'impédance-mètre, TFIR, MEB, DRX et EDS indispensables à l'analyse des composites ont été décrites en détails.

Les différentes théories de modélisation de claquage superficielle d'un isolant ont été synthétisées. Le modèle d'Obenaus a été modifié pour approcher le phénomène à la réalité.

Références bibliographiques chapitre II.

- [1]. B. Adhikari, S. Majumdar, "Polymers in sensor applications", Prog. Polym. Sci. Vol 29, 2004.
- [2]. P. Barber, S. Balasubramanian, "Polymer Composite and Nanocomposite Dielectric Materials; for Pulse Power Energy Storage", Materials, Vol 2, 2009.
- [3]. A.A.Khan, E. Husain, "Porcelain Insulator Performance under Different Condition of Installation around Aligarh", International Journal of Electrical, Electronic Science and Engineering Vol7, 2013.
- [4]. A. Greenwood, "A perspective on insulation systems in the electric power industry", IEEE, Trans on. Electrical insulation, Vol. EI 15, 1980.
- [5]. C. Guillermin, "Vieillessement électrique et thermique d'une composite résine époxyde-silice : étude des charges d'espace et de la conduction", Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier Grenoble I, 2004.
- [6]. S.M.Tamboli, S.T. Mhaske, "Crosslinked polyethylene", Indian Journal of Chemical Technology, Vol 11, 2004.
- [7]. M. Seghir Tahar, "Etude par Simulation de l'Influence de la Température sur l'Apparition des Décharges Partielles dans les Cavités Gazeuses Contenues dans la Couche Isolante des Câbles de Haute Tension", Thèse de Magister, Université de Laghouat, 2001.
- [8]. M. Guibadj Mossadek, "Etude par Simulation du Phénomène d'Apparition des Décharges Partielles dans les Cavités Gazeuses Contenues dans la Couche Isolante des Câbles de Haute Tension", Thèses de Magister, Université de Laghouat, 2001.
- [9]. C. R. Anil Kumar et al., "Investigation into the failure of XLPE cables due to electrical treeing: a physico chemical approach", Polym. Test. Vol 22, 2003.
- [10]. M. Nedjar, "Influence du Vieillessement Thermique sur les Propriétés de Polychlorure de Vinyle Utilisé dans l'Isolation des Câbles de Haute Tension", Thèse de Magister, Université de Tizi-ouzou 1991.
- [11]. Wul, W. Goldman, I.M.C.R, Acad.Sci.Russ.Vol 40, 1946.
- [12]. H. D. Megaw "Origin of ferroelectricity in barium titanate and other perovskite-type crystals", Acta Cryst.Vol 5, 1952.
- [13]. H. Lidjci, "Étude, élaboration et caractérisation de céramiques piézoélectriques", Saarbrücken Editions universitaires europeennes 2012
- [14]. C. Chlique, "Préparation et caractérisation de poudres et céramiques (oxy) sulfures pour applications en optique passive et active", Thèse de doctorat, Université Européenne de Bretagne, 2011.
- [15]. C. Morin, "élaboration par frittage flash de composites céramique/metal pour la protection balistique", Thèse de doctorat, université de Bourgogne, 2012.
- [16]. A. Zarefy, "Nanostructure et couplage magnétique dans des couches minces $(\text{Pt}=\text{Co})_3=\text{IrMn}$ à anisotropie d'échange perpendiculaire", Thèse de doctorat, université de Rouen, 2005.
- [17]. J. Chamberain, "The determination of refractive index spectra by fourier spectrometry", Infrared Physics, Vol. 9, 1969.
- [18]. J. Connes, P. Connes, "Near-Infrared Planetary Spectra by Fourier Spectroscopy. I. Instruments and Results", Journal of the Optical Society of America Vol. 56, 1966.
- [19]. P. Sabatier, "Etude du système $\text{Mn}_3-x\text{Co}_x\text{O}_4$ ($0 \leq x \leq 3$) sous forme de poudres et de céramiques. Structure, microstructure, propriétés magnétiques et électriques Applications aux thermistances à Coefficient de Température Négatif (C.T.N.)", Thèse de doctorat. Université Toulouse III, 2009.
- [20]. F. Kahoul, "Elaboration et caractérisation de céramiques PZT dopé et détermination de la frontière morphotropique (FMP)". Thèse de doctorat. Université Mohamed Khider – Biskra, 2013.
- [21]. F. o. H.Boeme, "Pollution Flashover Tests on Insulators in Laboratory and in Systems and Model Concept of Creep Path Flashover," Cigre, Vol. 11, 1966.

- [22]. F. Abdemalak, "Mathematical Models for Pollution Flashover", *Electra*, Vol. 78 , 1981.
- [23]. M. S. K. Naidu, "High voltage engineering", T. McGraw-Hill, Ed. The McGraw-Hill Companies, 1995 .
- [24]. A. P. S. Gohsh, "Estimation of Time to Flashover Characteristics of Contaminated Electrolytic Surfaces using a Neural Network", *IEEE Trans.on Dielect and Elect Insul*, Vol. 2, 1995.
- [25]. R. Wilkins, A. J. Al-Baghdadi, "Arc Propagation Along an Electrolyte Surface", *Proc IEE*, Vol. 118, 1971.
- [26]. Q. Yang, R. Wang, W. Sima, " Electrical Circuit Flashover Model of Polluted Insulators under AC Voltage Based on the Arc Root Voltage Gradient Criterion", *Energies*, Vol 5, 2012.
- [27]. A. M. R. a. C. Huraux, "Flashover Mechanism of High Voltage Insulators", *IEEE Trans. on Power Apparatus and Systems*, Vol 98, 1979.
- [28]. N. Dhahbi, "Modélisation Dynamique des Décharges sur les Surfaces d'Isolateurs Pollués sous Différentes Formes de Tension", Thèse de doctorat; Ecole doctorale de Lyon 1998.
- [29]. S. D. Kimbakala, "Modélisation dynamique des décharge se propageant sur des surfaces isolantes polluées ave des dépôts discontinus sous différentes formes de tension", Thèse de doctorat; Ecole doctorale de Lyon, 2007.
- [30]. B. F. Hampton, "Flashover Mechanism of Polluted Insulation", *PIEE*, vol. Vol. 111, 964.
- [31]. S. Hesketh, "General Criterion for the Prediction of Pollution Flashover," *Proc IEE*, Vol. 114, 1967.
- [32]. R. Wilkins, "Flashover Voltage of HV, Insulators with Uniform Surface Pollution Films," *PIEE*, Vol. 116,1969.
- [33]. A. C. S. Lakshminarasmha. S, "Computed of Flashover Voltages of Polluted Insulators Using Dynamic Arc Model," in 6th International Symposium on High Voltage Engineering,, New Orleans, 1989.
- [34]. R. Timghellette Rabah, "Effet d'une interface Air-isolant sur le contournement et le courant de fuit apparent a la fréquence industrielle", mémoire de Magister, Ecole nationale polytechnique, El- Harrach, Alger 2007.
- [35]. N.Dahabi, A.Beroual ; "A new proposal model for fashover of polluted insulators'' *J.Phys.D: Appl Phys.* Vol 30, 1997.

CHAPITRE III.

RESULTATS ET ANALYSE

Partie A : Résultats Expérimentaux:

Nous exposons dans ce chapitre le comportement du composite dans l'environnement humide et chaud.

III.1. Effet de l'eau sur le composite:

La quantité d'eau absorbée par les échantillons (avec un poids moyen de 0,4 g chacun) a été mesurée par une balance électronique (KERN ABT 120-4M, précision 2.10^{-4} g).

Les résultats de mesures sont donnés dans le Tableau III.1 et la figure III.1. Bien que $BaTiO_3$ est insoluble dans l'eau [1.2], les résultats montrent qu'il ya moins d'eau dans le composite par rapport au polymère pur. Le faible taux d'absorption est mesuré dans le cas des échantillons contenant entre 5% et 10% de $BaTiO_3$ comme charge. L'oscillation des mesures comme le montre la courbe (figure III.1) sont attribuées probablement à la dispersion hétérogène des particules au sien de la matrice polymère, puisque la formation d'agrégats ou de petits pores ou des vides ou des agglomérats de particules même peuvent conduire à plus d'absorption d'eau [3,4-5].

Comme il est prévu plus la teneur en charge est grande, plus le nombre de pores (ou le vide) entre grains de la matrice de polymère est réduit à condition que la charge ($BaTiO_3$) soit convenablement répartie sur l'ensemble de l'échantillon. L'analyse par microscopie électronique à balayage dans ce qui suit donnera plus de détails sur l'état des échantillons. Finalement, c'est l'échantillon contenant 15% $BaTiO_3$ (PVC et PRC) qui a absorbé plus d'eau.

%(BaTiO₃) en poids	0%	5%	10%	15%	20%
PCV	0.225%	0.215%	0.193%	0.226%	0.213%
PRC	0.286%	0.223%	0.227%	0.294%	0.271%

Tableau III.1: Taux d'absorption d'eau mesuré sur les échantillons en PVC & PRC.

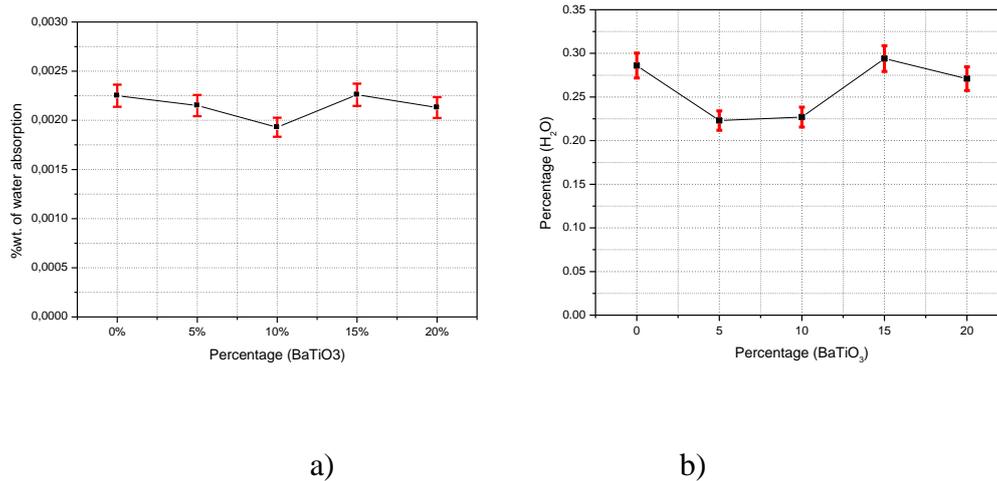


Figure III.1 : % en poids. de l'absorption d'eau mesurée sur des échantillons de
a) PRC et b) PVC chargés en BaTiO₃

III.2. Effet de BaTiO₃ sur la permittivité :

La figure III.2 montre que la constante diélectrique varie selon la même forme en fonction de la fréquence dans tous les cas avant et après que l'échantillon soit chargé. Mais ϵ_r augmente lorsque la teneur en additif augmente. Ceci est en accord avec la littérature [6-9].

Cette augmentation est remarquable surtout en ce qui concerne les échantillons à 15 et 20% en BaTiO₃. L'augmentation de ϵ_r est plus résolue quant aux échantillons en PRC.

Les courbes $\epsilon_r = f(f)$ présentent un maximum à 50 Hz (4.4 à 6.5) pour le PRC et (4.8 à 9.03) pour le PVC. Elles décroissent par la suite pour tendre respectivement vers des valeurs limites de 2,27 à 4,5 pour le PRC et 3.75 à 7.5 pour le PVC à 300 Hz en fonction de la teneur en BaTiO₃.

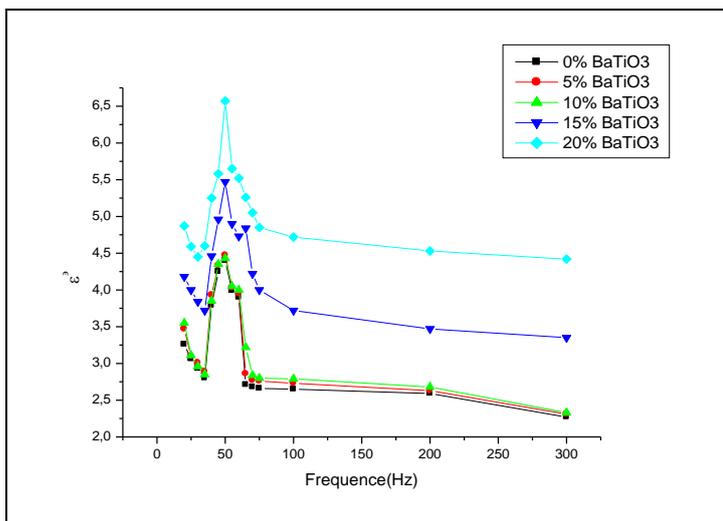
Les céramiques telles que BaTiO₃ sont connues pour leur haute permittivité. Cela se voit clairement sur la Fig.III. 2 où la permittivité des composites chargés en BaTiO₃ augmente comparativement avec l'échantillon non chargé (Fig.III.2, a,d), même pour les échantillons soumis à l'humidité (Fig.III.2, c,f) et pour les échantillons soumis au vieillissement thermique (Fig.III.2, b,e) . L'oxyde de titanate de baryum (BaTiO₃) contribue alors à l'augmentation de ϵ_r .

Le vieillissement de l'échantillon à 100 °C pendant 200 heures semble avoir peu d'effet sur la permittivité des composites. Les résultats sont comparables à ceux de la référence [9].

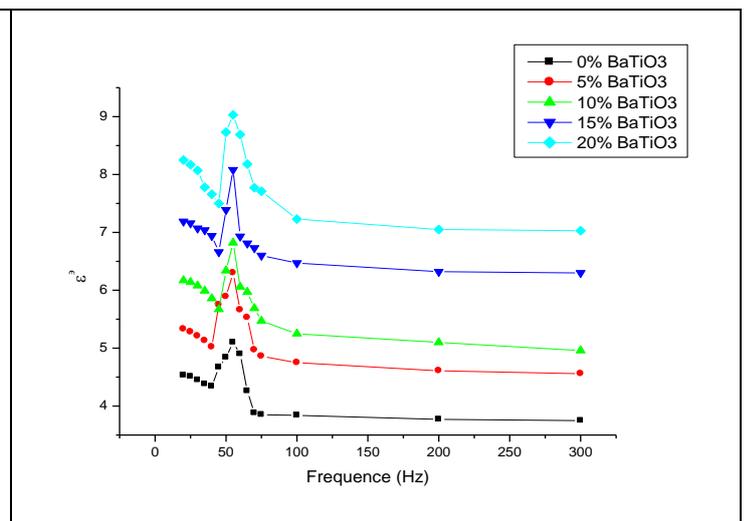
Concernant les composites en PRC, le vieillissement thermique de l'échantillon standard (sans BaTiO₃) a été caractérisé par une réduction de 3% sur ϵ_r (voir Fig.III.2, b). ϵ_r diminue

d'environ une moyenne de 12% pour l'échantillon contenant 5% de BaTiO₃. Cependant, une réduction de 9% et 6% ont été obtenues pour les échantillons chargés à 10% et 15% respectivement, alors que ϵ_r a été réduite de l'ordre de 3% pour l'échantillon de 20% en comparaison avec les résultats obtenus avec les mêmes échantillons (Fig.III.2,a) avant le vieillissement thermique.

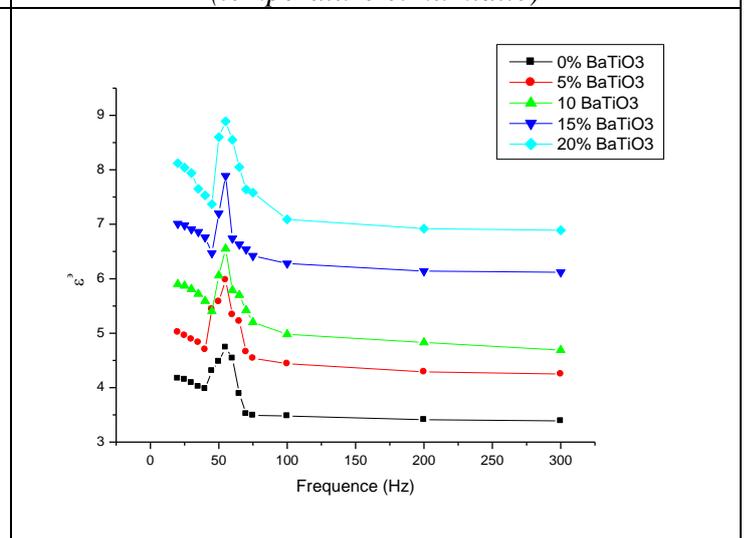
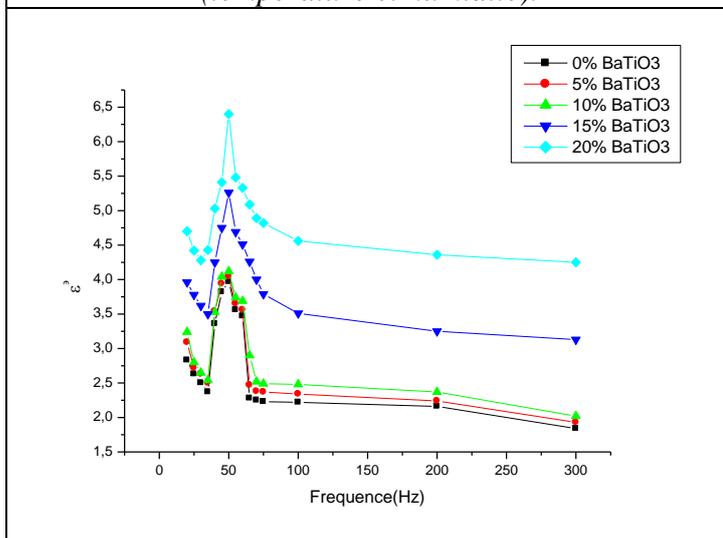
Concernant les composites en PVC, le vieillissement thermique de l'échantillon standard (sans BaTiO₃) a été caractérisé par une réduction de 5% sur ϵ_r (voir Fig. 2,e). ϵ_r diminue d'environ d'une moyenne de 6% pour l'échantillon de 5%. Cependant, une réduction de 4.7% et 2.7% ont été obtenues respectivement pour les échantillons 10% et 15%, alors que ϵ_r a été réduite de l'ordre de 2% pour l'échantillon de 20% en comparaison avec les résultats obtenus avec les mêmes échantillons (Fig.III. 2,d) avant le vieillissement thermique. L'effet thermique semble plutôt réduire les défauts dus au processus d'élaboration du composite et réduit donc la conductivité du composite.



(a) ϵ_r des échantillons PRC avant contrainte (température et humidité).



(d) ϵ_r des échantillons PVC avant contrainte (température et humidité)



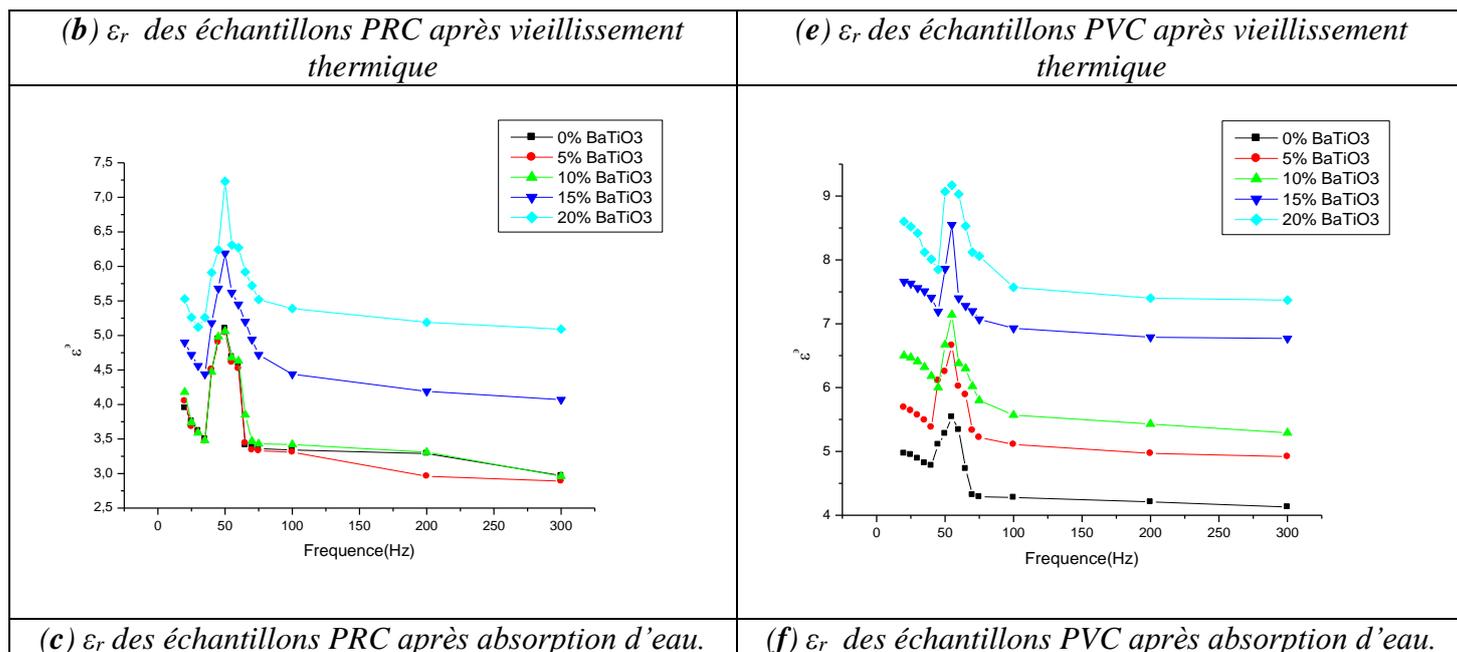


Figure III.2: Effet de $BaTiO_3$ sur la permittivité des échantillons de PRC et de PVC chargés au $BaTiO_3$.

Toutefois, on observe une augmentation d'environ 18% sur la valeur de ϵ_r des échantillons en PRC soumis à l'effet de l'eau et contenant 5%, 10% et 15% de $BaTiO_3$. ϵ_r augmente de 13% pour l'échantillon contenant 20% de $BaTiO_3$ (Fig.III.2, c) en comparaison avec les résultats obtenus avec les mêmes échantillons avant le vieillissement thermique (Fig.III.2, a). Cependant, ϵ_r de l'échantillon standard soumis à l'effet de l'eau augmente de 22%, comparativement au même échantillon avant l'absorption d'eau.

De même, on observe une augmentation d'environ 6% sur la valeur de ϵ_r des échantillons en PVC chargés à 5%, 10% et 15% et soumis à l'effet de l'eau. Cependant, ϵ_r augmente de 4% pour l'échantillon chargé à 20% (Fig.III.2, f) en comparaison avec les résultats obtenus avec les mêmes échantillons avant le vieillissement thermique (Fig.III.2, d). Cependant, ϵ_r de l'échantillon standard soumis à l'effet de l'eau est de 7% plus grand comparativement au même échantillon avant l'absorption d'eau.

L'absorption d'eau fait donc croître la permittivité relative du composite puisque la permittivité de l'eau est plus grande que celle du polymère ($\epsilon_{r \text{ eau}} =$ environ 80).

La variation dans les mesures précédentes est due à la différence dans le taux d'absorption de chaque pourcentage, surtout en ce qui concerne le PRC à cause de l'hétérogénéité de distribution des grains de $BaTiO_3$ dans la matrice du PRC. La grande quantité d'eau absorbée par le PRC (sans charge) s'explique probablement par la présence de poche d'air. Le $BaTiO_3$ est insoluble dans l'eau, bien que sa présence diminue le taux d'absorption. Ce que nous

constatons dans le cas des échantillons chargés à 5% et 10% est due aux interfaces matrice polymère/grains BaTiO₃ qui peuvent emmagasiner l'eau. Le taux d'absorption d'eau plus élevé concernant les échantillons chargés à 15% et 20% de BaTiO₃ s'explique probablement par la formation d'agrégats ou des agglomérats de particules de BaTiO₃ conduisant à des défauts susceptibles d'absorber davantage d'eau.

III.3. Effet de BaTiO₃ sur le facteur de perte :

Le tableau III.2 montre la valeur minimale de tgδ en fonction des fractions de BaTiO₃. On remarque que tgδ diminue avec l'augmentation du taux de charge. Le plus faible facteur (tgδ) de perte est mesuré sur les échantillons chargés à 15% et 20% de BaTiO₃.

Echantillon		0%wt. BaTiO ₃	5%wt. BaTiO ₃	10%wt. BaTiO ₃	15%wt. BaTiO ₃	20%wt. BaTiO ₃
sans contrainte						
tgδ(50 Hz)	PRC	0.273	0.244	0.233	0.126	0.085
	PVC	0.273	0.218	0.201	0.06	0.04
tgδ(300Hz)	PRC	0.045	0.03	0.028	0.013	0.01
	PVC	0.094	0.069	0.061	0.02	0.02
après vieillissement thermique						
tgδ(50 Hz)	PRC	0.44	0.37	0.36	0.25	0.172
	PVC	0.448	0.37	0.345	0.18	0.142
tgδ (300 Hz)	PRC	0.23	0.20	0.18	0.12	0.09
	PVC	0.269	0.23	0.205	0.14	0.116
après absorption d'eau.						
tgδ(50 Hz)	PRC	0.49	0.42	0.41	0.35	0.3
	PVC	0.46	0.39	0.36	0.25	0.22
tgδ (300 Hz)	PRC	0.28	0.20	0.22	0.26	0.225
	PVC	0.28	0.25	0.22	0.21	0.19

Table III.2: tgδ en fonction des fractions de BaTiO₃.

Le facteur de perte tgδ en fonction de la fréquence concernant les échantillons de PRC ou PVC pur et chargés au BaTiO₃ est représenté sur la Fig.III.3.

Concernant le PRC, on observe que le facteur de perte augmente jusqu'à la fréquence 30Hz puis diminue à la fréquence 35Hz, puis une croissance rapide de la courbe jusqu'à atteindre une valeur maximale à 50Hz, puis une décroissance rapide jusqu'à une certaine valeur de

fréquence 75Hz, et enfin une décroissance graduelle de la courbe à des valeurs proches jusqu'à la valeur correspondant à la fréquence 300Hz (voir tableau III. 2).

Pour le PVC on constate une augmentation rapide de la courbe de facteur de perte jusqu'à atteindre une valeur maximale à 50Hz, puis un décroissement rapide de la courbe jusqu'à une certaine valeur de fréquence, puis un décroissement graduelle de la courbe à des valeurs proches jusqu'à la valeur correspondant à la fréquence 300Hz (voir tableau III.2).

Les pertes diélectriques sont dues essentiellement à la charge d'espace en raison de la polarisation interfaciale provenant de défauts tels que les vides et les pores attendus au cours de l'élaboration des composites. Les résultats montrent que plus la quantité de BaTiO₃ est grande, plus les pertes diélectriques sont faibles. BaTiO₃ contribue donc à la réduction de la charge d'espace accumulée et à la modification de la densité de sa distribution.

Concernant les échantillons ayant été soumis aux contraintes thermique, et d'humidité, les courbes obtenues, étaient semblables à celle de l'échantillon pur du point de vue forme (Fig.III.3, b et Fig.III.3, c). On remarque que la valeur du facteur de perte décroît dans chaque cas d'addition de BaTiO₃, mais le taux de décroissance devient grand après l'addition de 15% de BaTiO₃ (voir tableau III.2).

Sous vieillissement thermique, $\text{tg}\delta$ diminue de 0,44 à 0,172 à 50 Hz et de 0,23 à 0,09 à 300 kHz pour le PRC et de 0,448 à 0,142 à 50 Hz et de 0,269 à 0,116 à 300 kHz pour le PVC lorsque la teneur en BaTiO₃ augmente de 0 à 20% en poids, (voir la figure III.3, b et le tableau III.2).

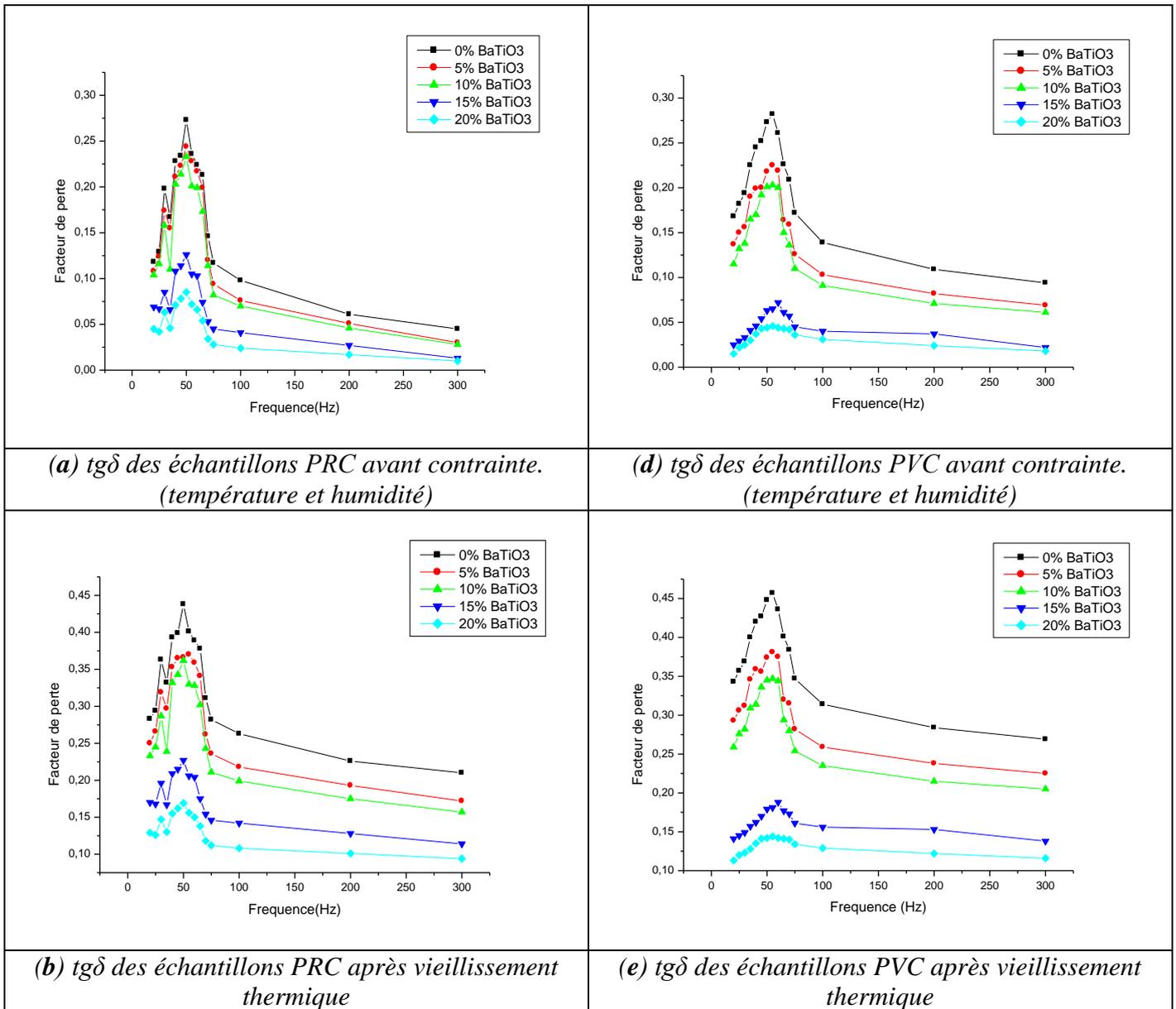
Se référant à la littérature, la charge d'espace diminue à haute température. Cependant il était attendu que les pertes auraient été plus faibles que celles trouvées, mais puisque la charge est du type ferroélectrique, la polarisation thermique peut être induite sous l'effet de la température à l'interface des grains, en plus, de la charge d'espace d'origine interfaciale, en conséquence $\text{tg}\delta$ augmente.

Cependant, sous l'effet de l'humidité, $\text{tg}\delta$ diminue de 0,49 à 0,3 à 50Hz et de 0,28 à 0,2 à 300 Hz pour le PRC et de 0,46 à 0,22 à 50Hz et de 0,28 à 0,19 à 300 Hz pour le PVC (voir la figure III.3, c et le tableau III.2). Dans le cas de l'absorption d'eau, les valeurs sont plus grandes par rapport aux cas précédents.

Dans les deux cas, sous les effets de température et d'humidité, $\text{tg}\delta$ augmente deux fois plus en comparaison avec les résultats obtenus avant vieillissement. Nous pouvons voir que même après vieillissement les pertes restent acceptables dans tous les cas.

Les petites particules (nanométriques) de la charge, particulièrement au niveau de l'interface avec la matrice polymère sont donc responsables des améliorations observées dans les

propriétés diélectriques des matériaux composites [5]. Les résultats obtenus sont en accord avec la littérature [7-9].



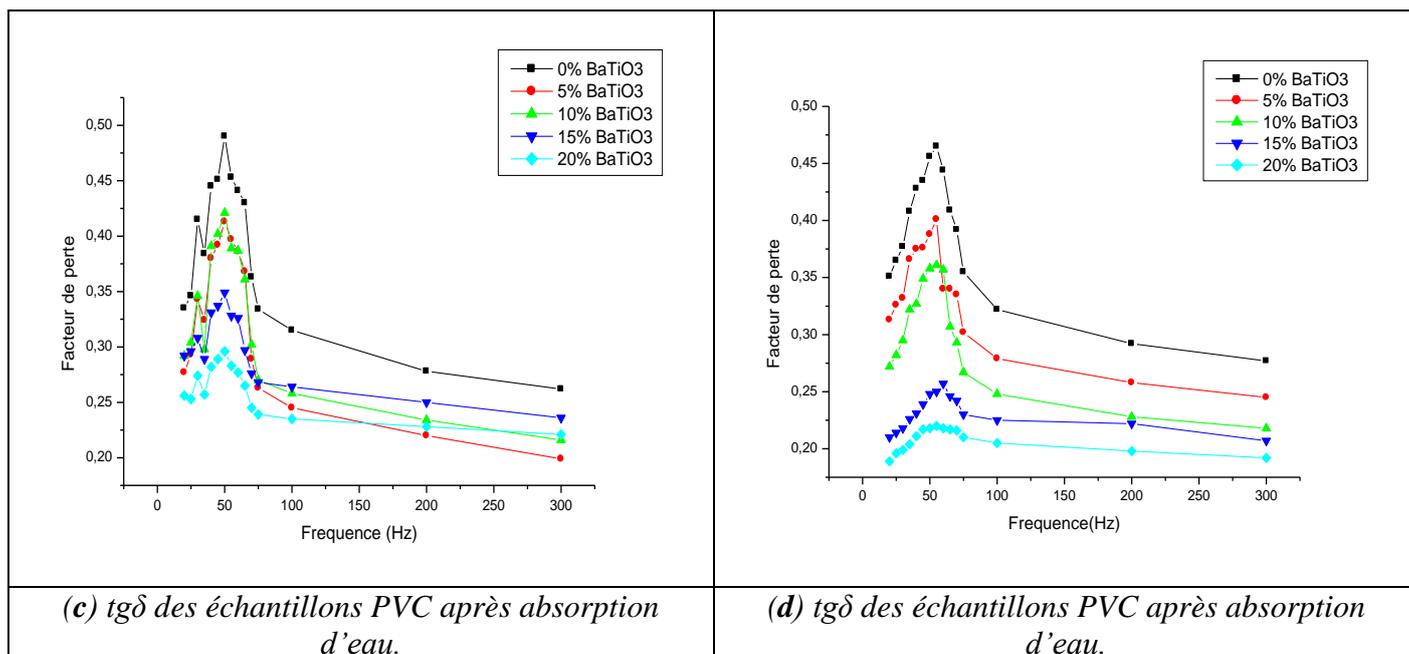


Figure III.3 : Effet de $BaTiO_3$ sur le facteur de pertes des échantillons de PRC et de PVC chargés $BaTiO_3$.

III.4. Effet du $BaTiO_3$ sur les pertes :

La figure III.4 représente l'évolution des pertes en fonction de la fréquence. Nous pouvons voir dans la figure.III. 4,a, les résultats obtenus sur les échantillons pure et chargé au $BaTiO_3$.

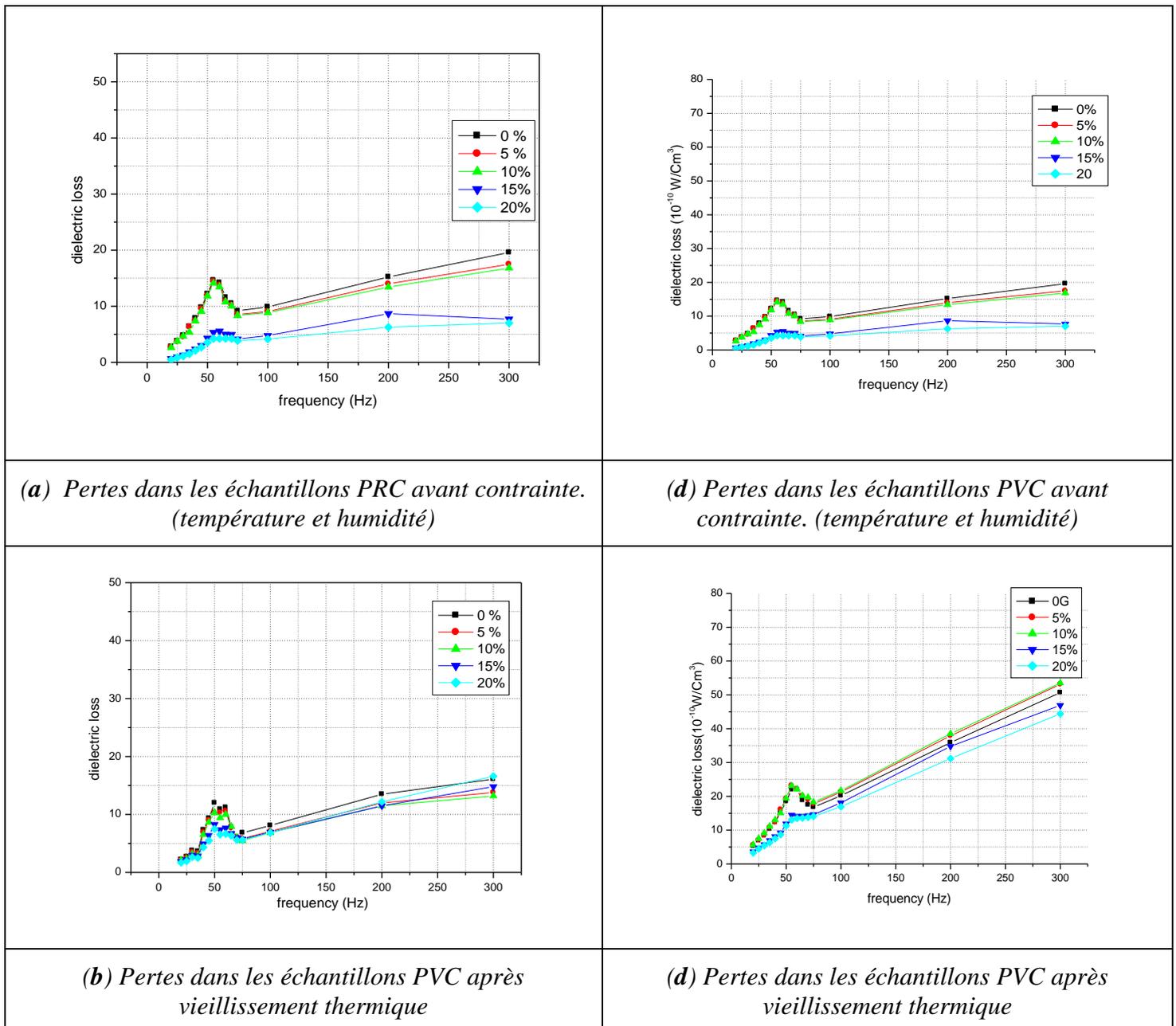
Les pertes les plus élevées ont été mesurées dans l'échantillon pur (0% $BaTiO_3$). Elle diminue, lorsque le contenu de la charge $BaTiO_3$ augmente. Ensuite, elles augmentent avec la fréquence dans la gamme (20-300 Hz). Le phénomène de relaxation est caractérisée par deux pics situés à environ 30 Hz et 50 Hz, pour le PRC et un seul pic situé à environ 50 Hz pour le PVC.

Les résultats montrent donc que l'addition de $BaTiO_3$ réduit de manière significative les pertes dans les échantillons fortement chargé (15% et 20% en poids. De $BaTiO_3$). Elles sont réduites au 1/3 dans le cas de l'échantillon chargé à 20%.

En outre, le vieillissement thermique affecte plus les pertes diélectriques (Fig.III. 4, b). Les pertes maximales observées à 300Hz varient sous l'effet thermique de $13,2 \cdot 10^{-10} W/cm^3$ à $16,6 \cdot 10^{-10} W/cm^3$ pour le PRC et de $44,4 \cdot 10^{-10} W/cm^3$ à $53,5 \cdot 10^{-10} W/cm^3$ pour le PVC en fonction de la teneur $BaTiO_3$. La plus grande valeur des pertes diélectriques correspond à l'échantillon non chargé, avant et après vieillissement thermique. La valeur la plus faible a été obtenue sur l'échantillon N°5 puisqu'elle était 3 fois plus élevée (Fig.III. 4, b) que dans le cas de l'échantillon en PRC non chargé (Fig.III. 4, a) et de 4 fois plus élevée (Fig.III. 4, e) que dans le cas de l'échantillon en PVC non chargé (Fig.III.4, d).

En ce qui concerne l'effet de l'humidité, les résultats de mesure sont représentés sur la figure III,4,c,f. Les pertes diélectriques mesurées sur l'échantillon N°5 étaient égales à $46.8 \cdot 10^{-10} \text{W/cm}^3$ pour le PRC et à $46.8 \cdot 10^{-10} \text{W/cm}^3$ pour le PVC à 300 Hz. Ces valeurs sont d'environ de 7 et 8 fois respectivement plus élevées que celles dans le cas des échantillons non chargés.

Cependant, $23.9 \cdot 10^{-10} \text{W/cm}^3$ et $64.1 \cdot 10^{-10} \text{W/cm}^3$ sont les faibles valeurs de pertes qui ont été enregistrées à 300 Hz sur les échantillons N°2 de PRC et N°3 de PVC respectivement. Ainsi, les échantillons fortement chargés ont absorbé plus d'eau.



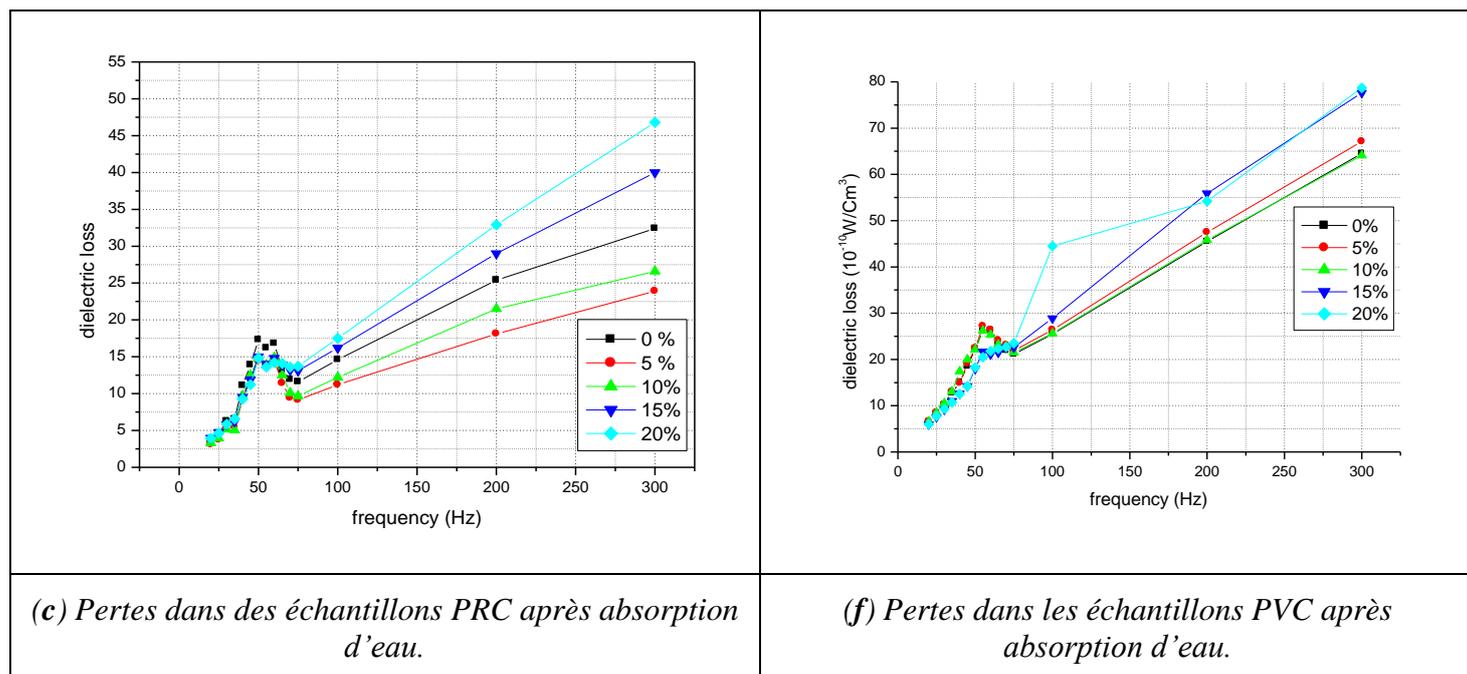


Figure III. : Effet de $BaTiO_3$ sur les pertes des échantillons de PRC de PVC chargés au $BaTiO_3$

III.5. Analyse micro-structurale des échantillons:

Afin de mieux comprendre le comportement des polymères chargés en $BaTiO_3$, nous nous focalisons dans ce qui suit sur l'étude structurale du composite PRC/ $BaTiO_3$.

III.5.1. Caractérisation par spectroscopie infrarouge:

La figure III.5 montre les spectres FT-IR de PRC pur et du composite PRC/ $BaTiO_3$. Les spectres d'absorption (figure III.5, a) présentent des absorptions différentes, situées à 2920 et 2850cm^{-1} . Ils sont respectivement caractéristiques d'étirage asymétrique et symétrique de groupes méthylène. D'autres pics ont été situés à 2300cm^{-1} et 2400cm^{-1} . Ceux-ci ont été observés dans tous les échantillons (chargé et non chargé), avant et après vieillissement. Ils proviennent probablement de la présence du CO_2 . Ils sont plus résolus que ceux rapportés dans la référence [3].

Par ailleurs, la bande d'absorption située à 1460 et 720 à 730cm^{-1} est due à la liaison C-H. On peut bien voir le zoom de la partie entourée par un rectangle (Fig.III.5, b) où les pics situés à 720 et 730cm^{-1} sont bien résolus. Ces résultats sont en accord avec la littérature [3]. Des bandes d'absorption similaires sont également observées pour le PRC chargé de $BaTiO_3$. Il n'y a aucune bande d'absorption enregistré dans la gamme 700cm^{-1} à 400cm^{-1} . Les spectres d'absorption des échantillons N° 4 (15% wt. $BaTiO_3$) et N° 5 (20% wt. $BaTiO_3$) ont tendance à diminuer en amplitude probablement pour l'apparition de pics d'absorption attendus vers

570cm^{-1} . Deux larges pics d'absorption caractéristiques du mode de vibration Ti-O et BaTiO_3 respectivement, telles que indiqué dans la littérature [9-10] sont donc attendus à 570cm^{-1} et 440cm^{-1} . Ces pics n'ont pu être enregistrés avec le spectromètre infrarouge utilisé car sa limite est aux alentours de 610cm^{-1} (voir figure.III.5, b).

Un autre pic d'absorption situé à 1474cm^{-1} correspond au mode de liaison CH_2 . Il est due à la phase cristalline telle que trouvé dans la littérature [6,11]. Un petit pic d'absorption est également apparu entre 1250cm^{-1} et 1000cm^{-1} pour les deux cas avant et après charge (figure III.5, a). La même bande d'absorption a été trouvé dans les travaux de Chonung Kim et al.[3].

Par ailleurs, les pics caractérisant les composites sont situés dans le même nombre d'onde que celui de PRC pur. Aucune modification chimique induite par BaTiO_3 n'est enregistrée sur le PRC.

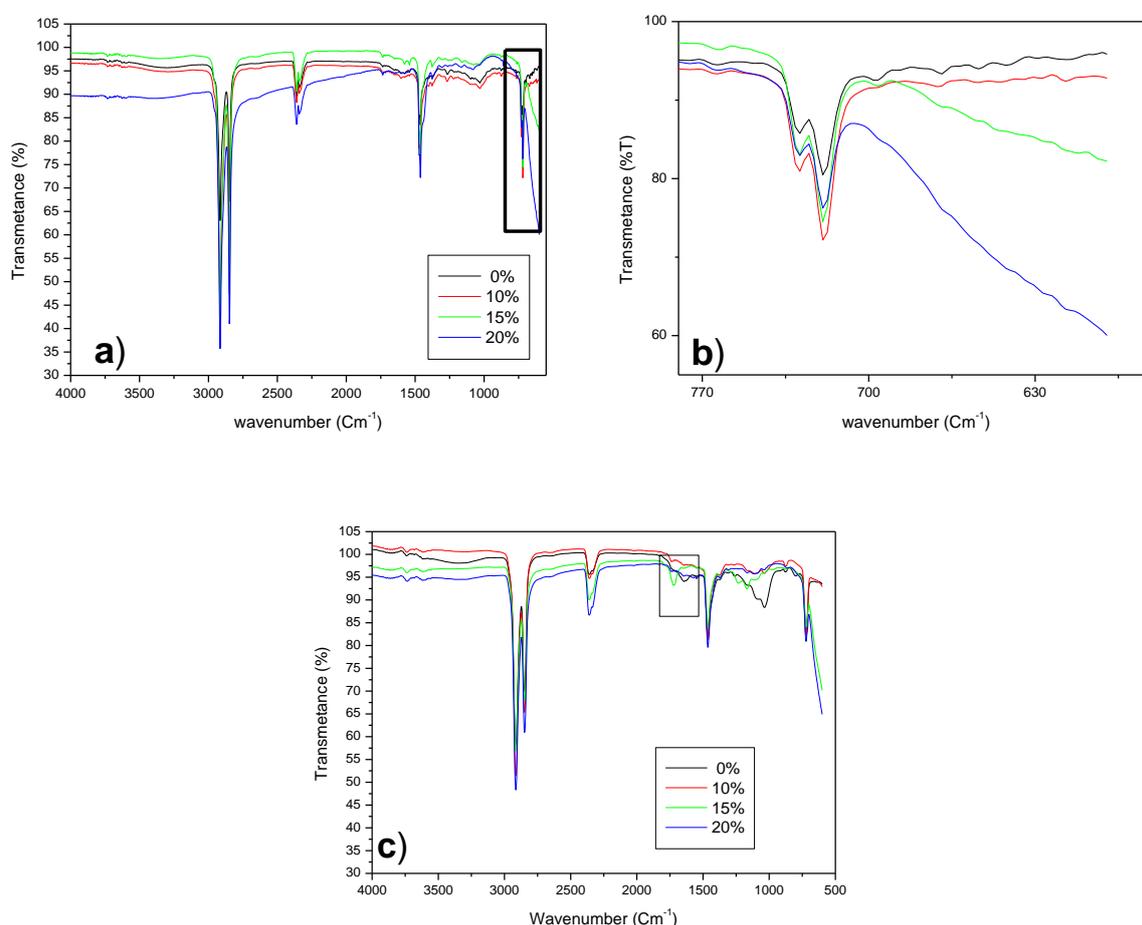


Figure III.5: Spectres FT-IR de PRC pur et composites PRC/ BaTiO_3 (a) Avant vieillissement thermique, (b) Zoom des spectres entourés par un rectangle Fig.III.5,a (c) Après vieillissement thermique.

Un nouveau petit pic d'absorption est apparu située à 1720cm^{-1} plus visible pour

l'échantillon N°4 (15% de BaTiO₃). Celui-ci est entouré par un carré dans les spectres de la Fig.III.5,c. Il est dû à la formation d'un groupe carbonyle, similaire à celui trouvé dans la référence [12]. Il est caractéristique de la détection de l'oxydation du PRC. Par ailleurs, la bande d'absorption observée entre 1250 cm⁻¹ et 1000 cm⁻¹ est plus résolue en particulier pour le premier échantillon. Ce dernier a été attribué à la durée du vieillissement.

Pour l'échantillon N°4 (15% wt.BaTiO₃), nous pouvons voir qu'il est moins résolu, et que le spectre est légèrement déplacé vers 1464 cm⁻¹ et 1474 cm⁻¹, que les références [6, 11] attribuent au mode de liaison CH₂ du à la phase amorphe et la phase cristalline respectivement. Si nous nous référons à la référence [6] et la Fig.III.5, a, la teneur en BaTiO₃ n'est pas à l'origine de ce pic (1464-1474 cm⁻¹) puisque les calculs effectués par J. Gonzalez-Benito et al.[6] ont montré que la teneur en matière amorphe reste quasiment stable (0,50%) pour les différentes charges de BaTiO₃ incorporé dans PEHD. Le déplacement de la bande d'absorption vers le nombre d'onde le plus élevé est plutôt attribué à l'augmentation de la phase cristalline sous l'effet de la température. Ce résultat explique par conséquent que tgδ décroît, sous effet du vieillissement thermique.

III.5.2. Caractérisation par microscopie électronique à balayage :

La morphologie de surface du PRC pur ainsi que le composite PRC/BaTiO₃ ont été étudiés par microscopie électronique à balayage. L'image MEB de la surface observée est représentée sur la Fig.III.6.

Nous pouvons voir l'image SEM du PRC pur (Fig.III.6, a), elle est caractérisée par une matrice sombre ou de petits domaines brillants sont uniformément dispersés. Cependant, l'image SEM de l'échantillon N°3 (10% wt.BaTiO₃) (Fig.III.6, b) comme nous le voyons, est plus claire et la dispersion des grains BaTiO₃ était aussi uniforme.

Par ailleurs, nous observons une plus grande luminosité et une distribution uniforme de grains BaTiO₃ dans l'image SEM de l'échantillon N°4 (15% wt.BaTiO₃) (Fig.III.6, c). L'image (Fig.III.6, d) montre le zoom de la zone limitée par un carré (Fig.III.6, c). L'image SEM (figure.III.6, d) montre la présence de petits vides ou pores (fissures) dans l'échantillon N°4.

Au contraire, dans les échantillons N°2 (5% wt.BaTiO₃) et N°3 (10% wt.BaTiO₃), les particules de charge présentent relativement une bonne dispersion dans la matrice de PRC. Nous pouvons voir peu d'agglomération des particules, donc peu de porosité ont été observés. L'incorporation de plus de 10% en poids de BaTiO₃ peut conduire ainsi à des fissures. Le même résultat a été trouvé dans la référence [9].

L'EDS de PRC pur et PRC chargé à 15% BaTiO₃ en poids, sont donnés dans Fig.III.7.

Les ratios de Ba et Ti dans le composite étaient respectivement de (7,95%) et (8,66%). Les images MEB montrent bien qu'il ya des fissures et des pores dans les échantillons. Ce qui explique effectivement l'absorption de l'eau et l'accumulation de charge d'espace dans les défauts et par conséquent on confirme les résultats obtenus précédemment concernant ϵ_r , $\tan\delta$ et l'indice de perte.

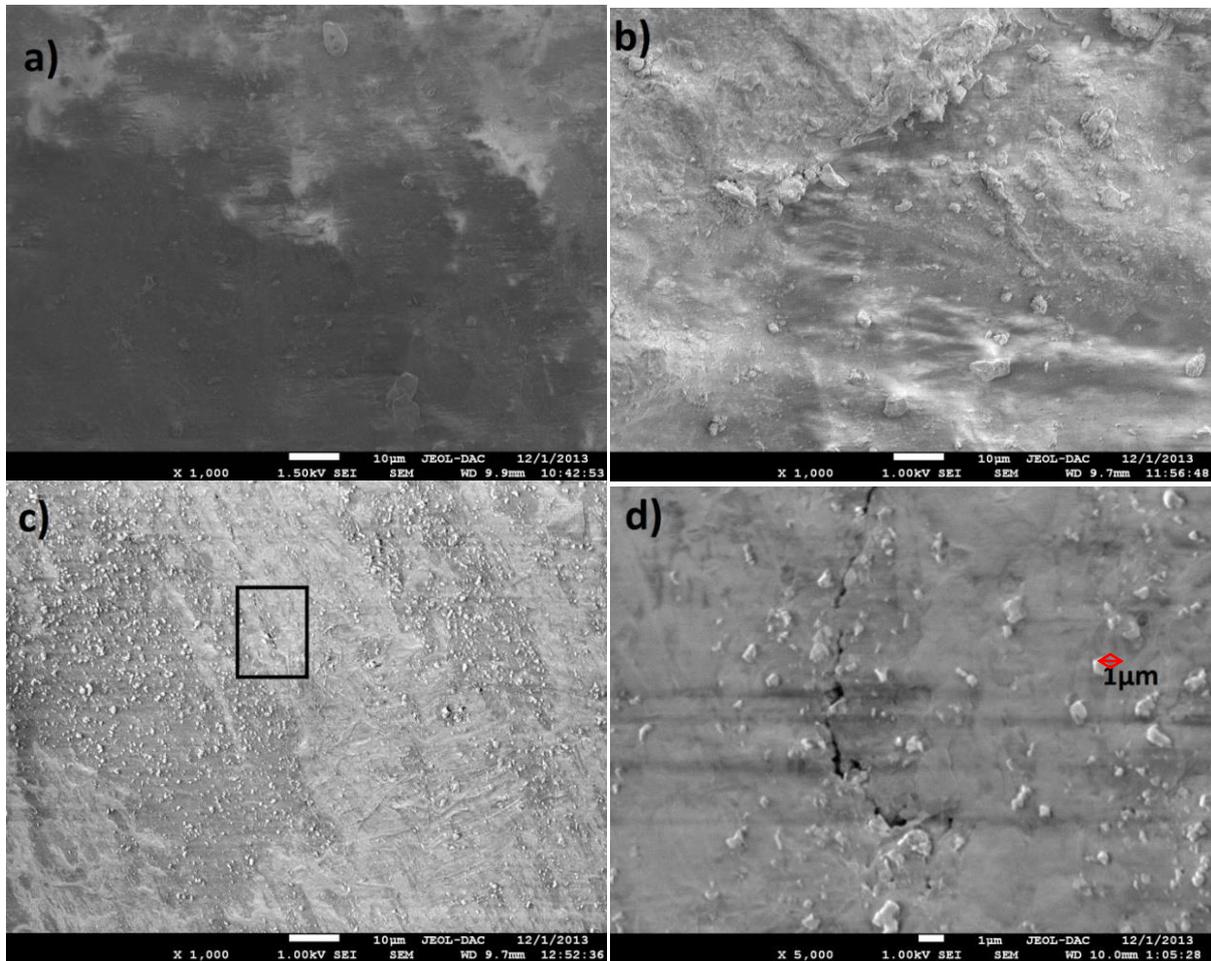


Figure III.6: Image MEB de (a) PRC pure, (b) PRC chargé à 10%wt $BaTiO_3$, (c) PRC chargé à 15%wt. $BaTiO_3$ (d) Le zoom de la zone entourée d'un carré de Fig.6, c".

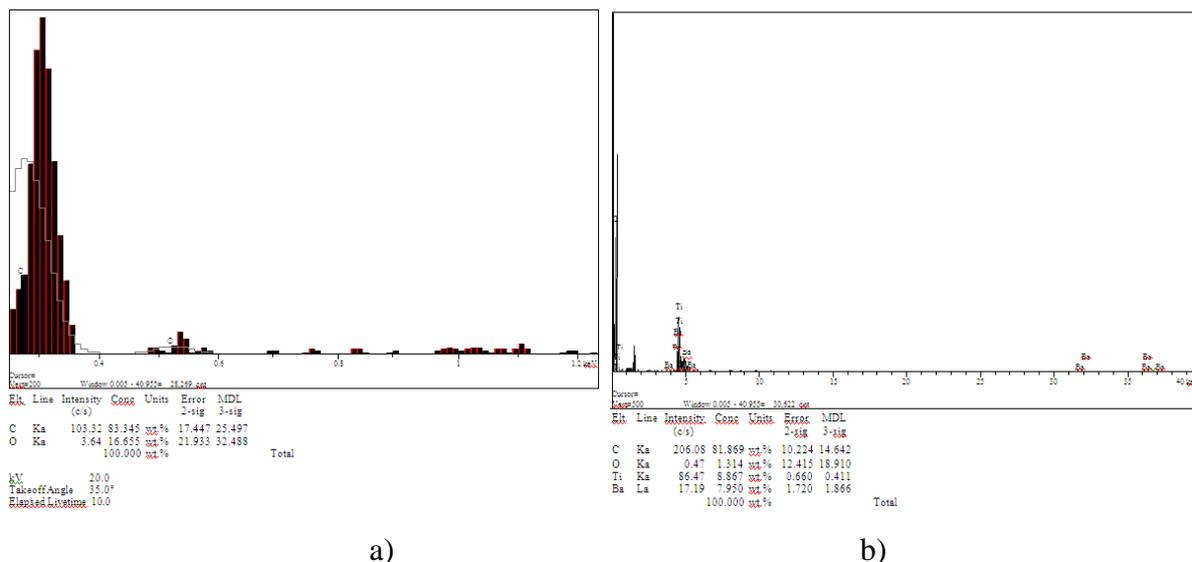


Figure III.7: EDS of a) pure XLPE b) PRC chargé à 15%wt. de BaTiO₃.

La morphologie de surface du PRC pur et PRC dopé au BaTiO₃ a été étudiée. Afin d'identifier toute variation de pourcentage de cristallinité des échantillons du film ou l'appariations de nouvelles phases, l'analyse par diffraction des rayons X est présentée dans la section suivante.

III.5.3. Analyse par DRX:

Afin d'étudier la stabilité de la structure cristalline de BaTiO₃ au cours du processus de préparation du composite, les mesures de diffraction des rayons X ont été effectuées. La taille des grains de BaTiO₃ a été évaluée à 70 nm. Les diagrammes de diffraction des rayons X concernant le PRC pur et le PRC chargé à 10% et 20% en poids sont présentés dans la figure III.8, a. Pour ce qui est du PRC pur, le diagramme caractéristique est composé de trois pics à 21,5, 23,9 ° et à 36 °. Ils sont caractéristiques des plans 110, 200 et 020 respectivement en comparaison avec le diagramme de référence (00-040-1995). En référence à ce diagramme, la cristallinité a été évaluée à 56 comparable à celle trouvée dans la littérature [13]. Dans la référence [6], la cristallinité de PEHD chargé au BaTiO₃ à 1% , 5% , 10% et 20% en poids a été évaluée à 50-53%. Nos résultats sont donc proches avec celle de la littérature.

En revanche, le diagramme des rayons X du composite est caractéristique d'une symétrie cubique dont le paramètre est égal à 3,9958 °Å et les pics de réflexion apparaissent à 2 θ (22,25 °, 31,7 °, 39 °, 45,34 °, 51,1 °, 56,32 ° et 65, 98 °). Ils correspondent aux plans de diffraction (100), (110), (111), (200), (210), (211) et (320), respectivement. Ils sont comparable au diagramme de référence (01-075-2121).

Cela signifie qu'aucun changement n'a eu lieu quand à la cristallinité du composite et pas de nouvelle phase dans ce composite. On peut déduire de ces diagrammes des rayons X qu'il n'y

a pas d'interaction indésirable à l'interface PRC/BaTiO₃. Les mêmes résultats ont été trouvés dans les références [9-10].

Le diagramme des rayons X de la figure III.8, b concerne les composites après vieillissement thermique. On n'observe aucun changement dans le diagramme et la cristallinité du composite reste stable après avoir été soumis à 100 °C pendant 200 heures.

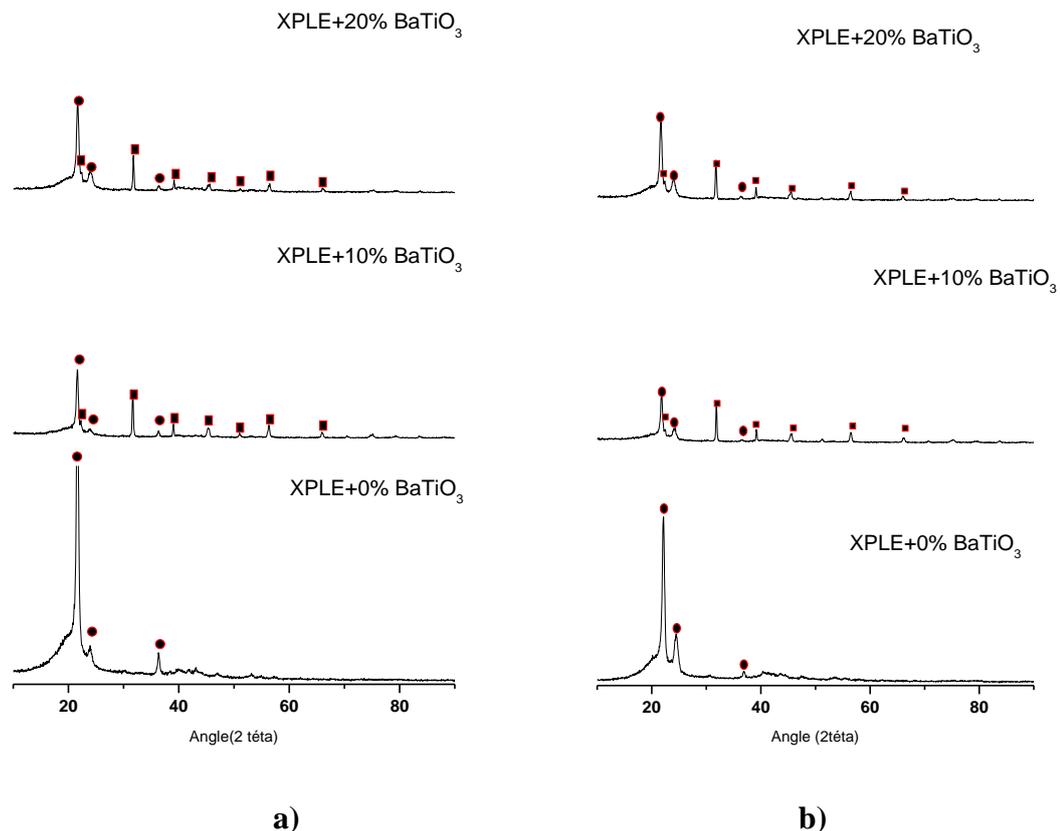


Figure III.8: Diagramme de diffraction des rayons X concernant les échantillons PRC purs et chargés

a) avant vieillissement b) après vieillissement. (○ PRC, □ BaTiO₃)

III.6. Discussion:

Les influences de BaTiO₃ comme nano-charge, de la température et de l'absorption d'eau sur les propriétés diélectriques du PVC et du PRC sont analysés dans ce paragraphe.

Généralement, la littérature affirme que ϵ_r et $\text{tg}\sigma$ dépendent des propriétés physiques, chimiques et des changements structurels du polyéthylène pendant le service. Afin d'améliorer les performances, de nouveaux polymères (PE) et des composites polymériques contenant une poudre de céramique ont été développés [14-15]. Dans le domaine de l'ingénierie électrique, il est nécessaire de comprendre le comportement diélectrique des câbles et de la surface de

l'isolateur vieillis sous l'effet de la température [16-18]. La température, par conséquent, le mécanisme de conduction ionique des polymères est l'un des domaines les plus étudiés [19-20], puisque la conductivité électrique du polymère augmente avec l'augmentation de la température [19]. Par ailleurs dans la référence [20], il est rapporté que la conductivité électrique diminue avec l'augmentation de la teneur en BaTiO₃. Ceci a été expliqué comme réduction de la charge d'espace (en raison du comportement de capture de la céramique) dans la matrice de PVC. Les principaux porteurs de charges ont été attribués à des ions libres dus aux ingrédients utilisés dans la réaction de polymérisation du PVC, tel que le stabilisateur, aussi bien que les ingrédients dans le plastifiant lui-même.

Dans le cas de notre travail, ϵ_r augmente et $\tan\delta$ diminue lorsque les taux de nano-charge augmentent (voir fig.III.2, et III.3). Comme nos échantillons ont été élaborés dans les mêmes conditions que ceux de la référence [20], l'une des explications plausibles de l'augmentation de ϵ_r avec la teneur en BaTiO₃ (Fig. III.2, a,d) peut être la conductivité des nano-particules de BaTiO₃ incorporées dans les interfaces inter-granulaires du PVC et du PRC.

Cependant, après vieillissement thermique (Fig.III. 2, b, e) ϵ_r diminue très légèrement (de l'ordre de 3% pour PRC, et 4% pour PVC) en comparaison avec les résultats obtenus avant le vieillissement thermique (figure.III.2, a,d). Un résultat similaire a été rapporté dans la référence [21], puisque les valeurs ϵ_r étaient de l'ordre de 5% plus élevé que les valeurs de la PEI ayant subi un traitement thermique. La raison semble être ne pas évidente comme il est dit dans la référence [21]. Cependant, nous attribuons les différences des valeurs de ϵ_r (avant et après vieillissement thermique) à la réduction des impuretés (telles que les cavités de gaz) dans les PRC et PVC, sous l'effet de la température comme également la réduction possible des petits pores en plus du BaTiO₃. Le résultat est en fait en corrélation avec celui trouvé sur l'augmentation de la phase cristalline sous l'effet de la température (voir spectres FTIR Fig.III.5, c).

Par ailleurs, ϵ_r augmente également légèrement après absorption de l'eau (figure III.2, c,f) par rapport aux échantillons non chargés (figure.III.2, a,d) puisque l'eau est un milieu polaire. L'augmentation de ϵ_r est en accord avec les résultats trouvés dans la littérature [6, 19, 1, 23, 2].

L'équation (I.1) et les données de la référence [21] peuvent être utilisés pour calculer la permittivité (ϵ_c) du composite puisque le composite est similaire à celui étudié dans cette référence. PEI ($\epsilon_b=3,17$) a été remplacé par PRC ($\epsilon_b=2,27$) ou PVC ($\epsilon_b= 3.75$). ϵ_b égal à 2.27

et 3.75 respectivement ont été prises comme valeurs moyennes mesurées dans la gamme 75-300 Hz (voir la figure.III.2, a, d).

La valeur donnée par le fabricant du câble PRC était de 2,2 à 2,4 et celle du PVC était de 3 à 5. Notre valeur mesurée était ainsi dans la plage requise. Le tableau 3 donne la valeur calculée de ϵ_c à l'aide de l'équation (I.1), pour deux fréquences, 50Hz et 300Hz en fonction de la fraction en poids de BaTiO₃. Le rapport entre la permittivité relative du BaTiO₃ ($\epsilon_1= 3300$) à celle de la PRC et PVC, est très grand ($R_{\epsilon\text{PRC}} = 1320$ et $R_{\epsilon\text{PVC}}= 660$) respectivement. En effet, en raison de ce grand rapport $R\epsilon$, le résultat de la permittivité relative du composite est faiblement sensible à la permittivité relative du BaTiO₃ tel que prédit par Lomax et al [21]. Pour les trois premiers échantillons contenant respectivement (0%, 5% et 10% wt) de BaTiO₃, ϵ_{ctheo} est plus proche de ϵ_{cexp} Puisque ces échantillons ne présentent pas de fissure par rapport au quatrième et cinquième échantillon, comme il a été caractérisé par SEM. La différence entre ϵ_{ctheo} et ϵ_{cexp} est plus grande que celle des premiers échantillons. Les résultats peuvent être confirmés en utilisant l'équation (I.2). La valeur ϵ_c du composite se situent dans l'intervalle requise pour les polymères organiques [24].

Par ailleurs, l'effet du champ électrique sur le composite est exprimé par l'équation (I.3). Mathématiquement, nous pouvons déduire que E_{par} agissant sur les particules en composite sera plus petit que le champ électrique appliqué E_{app} . E_{par} a été calculé dans la référence [25]. Les auteurs ont constaté que E_{par} augmente lorsque la taille des grains diminue. L'utilisation des nano-filler peut augmenter donc E_{par} , par conséquent, nous pouvons approcher la tension de claquage du composite à celui du PRC, ou du PVC (sans ou à faible défauts).

Weigh Fraction	Volume Fraction									
			$\epsilon_{r \text{ exp}}$ at 50Hz		$\epsilon_{r \text{ theo}}$ at 50Hz		$\epsilon_{r \text{ exp}}$ at 300Hz		$\epsilon_{r \text{ theo}}$ at 300Hz	
	PVC	PRC	PVC	PRC	PVC	PRC	PVC	PRC	PVC	PRC
					PVC 4.84	PRC (4.4)			PVC 3.75	PRC (2.27)
0%	0	0	4.84	4.4	4.83	4.43	3.75	2.27	3.74	2.32
5%	0.0119	0,008	5.89	4.47	5.22	4.55	4.56	2.31	4.06	2.4
10%	0.0248	0,0172	6.34	4.43	5.67	4.69	4.96	2.33	4.43	2.49
15%	0.0382	0,0270	7.39	5.47	6.19	4.84	6.3	3.35	4.85	2.55
20%	0.0541	0,0379	8.73	6.57	6.87	5.01	7.03	4.42	5.41	2.64

Table III.3: Les valeurs de la permittivité mesurée ϵ_{cexp} et calculée ϵ_{ctheo} du composite.

Cependant, le champ caractéristique E_0 (inclus dans l'équation I.4) du composite est le champ électrique avec 63,2% de probabilité de défaillance. Celui-ci a été calculé dans la référence [21] pour différentes fraction volumique (fraction en poids) de $BaTiO_3$ en PEI. E_0 diminue lorsque la teneur en nanoparticules augmente. $BaTiO_3$ contribue donc à accroître le champ de claquage. Néanmoins, E_0 dépend en particulier des valeurs αw puisque plus cette valeur est élevée, plus la distribution des défauts présents dans le diélectrique est étroite, plus élevé est E_0 . D'autre part, plus est grande la fraction en poids de $BaTiO_3$, plus est petite la valeur de αw , plus petite est la valeur de E_0 . Une petite valeur de αw , signifie moins de défauts, alors moins d'accumulation de charge d'espace, et moins de champ électrique déformée. Par conséquent, l'incorporation de $BaTiO_3$ contribue à réduire $P(E)$.

Nous pouvons conclure que dans le but d'augmenter le champ de rupture du composite, il est indispensable et nécessaire de maîtriser le processus d'élaboration du polymère ou du composite pour atteindre la petite valeur de la probabilité cumulative de défaut $P(E)$ (I.4) pour un champ électrique donné.

Par ailleurs, dans cette thèse les échantillons ont été vieillis thermiquement à 100 °C pendant 200 heures comme dans les références [23, 26] et ont été immergés dans l'eau pendant 72 heures. Ensuite, ils ont été séchés afin d'étudier l'influence de l'eau sur les paramètres diélectriques tout en restant dans les conditions environnementales d'isolant. La faible absorption d'eau et son effet sur la modification des paramètres diélectriques sont plutôt attribués à des défauts d'élaboration tels qu'ils sont représentés dans la figure.III.6. Nous pouvons ainsi voir la fracture de l'échantillon dans Fig.III.6, d. Celle-ci contribue donc au stockage de l'eau et à la polarisation interfaciale. Cependant, la diminution du facteur de perte (fig.III.3) et (Fig.III.4) avec l'augmentation de la charge $BaTiO_3$ est attribuée à la réduction de la charge d'espace dans la masse de l'échantillon tel qu'il est indiqué dans la littérature [27].

Les dipôles moléculaires (peut-être) créés par le déplacement microscopique de charge d'espace étaient donc réduits. Le facteur de perte, est donc réduit lorsque des particules de $BaTiO_3$ (jusqu'à 10% en poids.) sont incorporées dans le PRC. Dans le cas des échantillons N°3, 4 et 5 (Fig.III.3, c,f) et surtout avec l'échantillons de PRC, dans la gamme de fréquence 100-300 Hz, le facteur de perte augmente de nouveau. Il est connu que la perte diélectrique dépend des polarisations électronique, ionique, dipolaire et des charges d'espace surtout en basse fréquence. Comme l'eau est un milieu polaire, il contribue à la polarisation de charge d'espace, donc à l'augmentation de $tg\delta$.

En se référant aux résultats obtenus en utilisant différentes techniques de caractérisation (spectroscopie IR, SEM et RDX), on en déduit que l'incorporation de BaTiO₃ dans la matrice en PVC ou en PRC, ne modifie pas la cristallinité et la morphologie de ces derniers. Les diagrammes des rayons X du PRC est stable avant et après vieillissement (Fig.III.8). Aucune altération chimiques n'est enregistré dans le composite.

Cependant, les spectres d'absorption IR caractérisant les échantillons avant le vieillissement thermique sont restés également stables (Fig.III.5, a) sauf pour un nombre d'onde courte (vers 610 cm⁻¹), où l'on observe la tendance à obtenir des pics caractéristiques de BaTiO₃. Les résultats sont similaires à ceux qu'on trouve dans la littérature [3, 19, 6, 28, 9, 29]. BaTiO₃ dans les composites contribue donc plutôt à réduire les défauts et constitue par conséquent une nouvelle phase située à l'interface inter-granulaire du composite. Le système PRC/BaTiO₃ conduit ainsi à l'abaissement de la mobilité des segments macromoléculaires tel que le PRC représentés dans la référence [20]. Néanmoins, des petits changements ont été observés après vieillissement thermique. Les spectres d'absorption IR correspondant présentent de nouveaux pics situés à 1720 cm⁻¹ et autour de 1250 cm⁻¹ (fig.III.5, c).

La bande d'absorption enregistrée entre 1250 cm⁻¹ et 1000 cm⁻¹ était plus résolue particulièrement sur l'échantillon N°1 que pour l'échantillon N°4. Ceci montre que l'effet de la température a été plus important sur l'échantillon pur que sur l'échantillon dopé (N°4). Le pic localisé vers 1250 cm⁻¹ caractérise l'effet du vieillissement thermique comme rapporté dans la référence [3]. Il a été attribué à la température et la durée de vieillissement.

Le pic situé à 1720 cm⁻¹ caractéristique de la présence d'oxydation (groupe carbonyle). Il caractérise l'oxydation du PRC. Ceci a été enregistré seulement dans l'échantillon N°4 puisque les fissures ont été observées par SEM (Fig.III.6, c). L'échantillon était plus sensible aux effets de la température.

Finalement, les résultats montrent bien que le composite est moins sensible au vieillissement thermique. Par ailleurs, l'évolution des spectres est en corrélation avec la variation des propriétés diélectriques, puisque l'indice de perte et les pertes diminuent (Fig.III.4, b,e) et tgδ augmente (Fig.3, b,e) en comparaison avec les résultats avant le vieillissement thermique (Fig.III.4, a,d et la fig III.3, a,d) respectivement.

D'autre part, les pertes diélectriques augmentent sous l'effet de l'humidité (figure III.4, c,f). Cela se voit dans l'image MEB (figure 6, d) que la fissure est l'un des défauts qui sont à l'origine d'absorption d'eau. Puisque l'eau est un milieu fortement polaire, et $\epsilon_{r \text{ eau}}$ est de l'ordre de 80-83, la conductivité du composite sera plus grande.

Les phénomènes de la charge d'espace et les différents types de polarisation (orientation et interfaciales) qui sont en relation avec la densité du polymère-charge et la molécule d'eau sera plus grande puisque ces polarisations induisent plus de pertes et contribuent à des phénomènes de relaxation surtout en basse fréquence.

Les pics de relaxation ont été souvent étudiés en haute fréquence (quelques kHz à MHz), et peu en basse fréquence [3, 30]. Parmi, ceux rencontrés dans la littérature les travaux réalisés par M. Felix et al dans la plage de température de 27°C à 68 °C et dans la gamme de fréquence 10^{-4} - 10^2 Hz, concernent le PVC chargé au BaTiO₃. Le pic de relaxation a été obtenu entre 10^{-4} Hz et 1 Hz, respectivement, à 27°C et à 68°C. La fréquence de relaxation se déplace vers des fréquences plus élevées avec l'augmentation de la température. Ce déplacement du pic de relaxation en fonction de la température a été indiqué aussi dans la référence [26]; seulement la forme et l'amplitude des pics formés restent plus ou moins constantes dans la plage de 50 à 100°C. Dans cette dernière gamme, la fréquence de relaxation du composite se stabilise autour de 50 Hz [26].

Cette valeur de la fréquence de relaxation a été trouvée dans toutes nos mesures (Fig.III.2, Fig.III.3 et Fig.III.4) puisque tous les échantillons ont été malaxés et chauffés pendant 200 heures à 100 °C.

Toutes les courbes présentent un pic de relaxation autour de la fréquence de 50Hz. Ce pic est dû aux polarisations interfaciales et d'orientation. Concernant les courbes (permittivité, facteur de perte et indice de perte) des échantillons en PRC, un autre pic est apparu autour de 35 Hz. Il est probablement dû à l'effet de l'agent griffant intégré dans la molécule de PRC comme indiqué dans la littérature [28, 31]. La réticulation a été caractérisée effectivement par DRX (voir Fig.III.8). Cette réticulation contribue donc à augmenter le pourcentage de cristallinité du composite tel que rapporté dans la référence [28]. Pour une température de vieillissement donnée, le facteur de perte est caractérisé par la présence de pics dus au mouvement de relaxations (rotationnelle, de translation et de vibration) des segments de chaîne du PRC. Le vieillissement thermique a donc une influence significative sur la valeur de l'indice de perte et les pertes. Ceci peut être expliqué par la diminution relative dans la viscosité du polymère et l'augmentation de la mobilité moléculaire induite par le mouvement de relaxation des segments de la chaîne de PRC comme rapporté dans [32].

Le pic de relaxation se déplace vers les hautes fréquences, (fig.III.4), tel que donné dans la littérature [33]. Notant que la concentration des particules de BaTiO₃ influence une variation systématique de la valeur maximale des pertes. L'intensité du pic diminue avec l'augmentation de la teneur en BaTiO₃ et en même temps se déplace légèrement vers des fréquences plus

basses à des concentrations plus élevées. Les résultats obtenus sont donc en accord avec ceux des références [19, 26]. Les phénomènes de relaxation ont été observés dans tous les échantillons examinés. Il peut être attribuée essentiellement à la polarisation interfaciale des chaînes macromoléculaires telle que rapportée dans la littérature [7], en plus, de la relaxation due à BaTiO_3 comme phase inter-granulaire dans le composite.

Partie B : Résultats de simulation :

Nous présentons dans cette deuxième partie du chapitre les résultats de simulation du modèle d'Obenaus modifié utilisant la configuration représentée sur la Fig.III.9. Les données de simulation sont les valeurs expérimentales des différents échantillons soit chargés en BaTiO_3 , ou bien non chargés (Tableau III.3).

A cet effet, les dimensions du système de configuration étudié sont:

- ✓ Dimensions géométriques: $a=3\text{cm}$; $d=12\text{cm}$, $D=30\text{cm}$, $L=50\text{ cm}$, $V=1\text{ volt}$.
 d est la distance inter électrodes; D est la longueur des électrodes, E est l'épaisseur de la plaque et a est la largeur des électrodes.

A noter que le contour est choisi de telle sorte que son prolongement n'a aucune influence sur le système, il est distant de l'échantillon d'environ 2m de tous les cotés.

- ✓ Les valeurs de la permittivité sont les suivantes : $\epsilon_r \text{ verre} = 5.6$; $\epsilon_r \text{ PVC } 0\% = 4.84$; $\epsilon_r \text{ PVC } 5\% = 5.89$; $\epsilon_r \text{ PVC } 10\% = 6.34$; $\epsilon_r \text{ PVC } 15\% = 7.39$; $\epsilon_r \text{ PVC } 20\% = 8.73$; $\epsilon_r \text{ PRC } 0\% = 4.4$; $\epsilon_r \text{ PRC } 5\% = 4.47$; $\epsilon_r \text{ PRC } 10\% = 4.43$; $\epsilon_r \text{ PRC } 15\% = 5.47$; $\epsilon_r \text{ PRC } 20\% = 6.57$.

Nous considérons que le système est isolé (Figure.III.9), et nous traçons le champ en fonction de x au niveau de l'interface. Les électrodes sont soumises à une différence de potentiel de 1V comme le montre la figure III.9

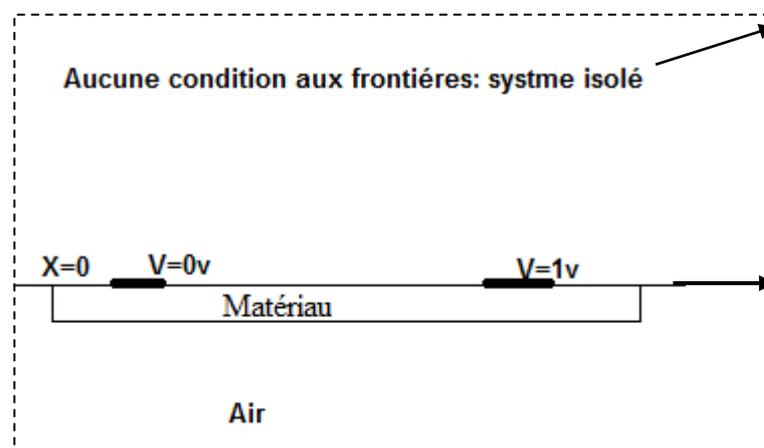


Fig. III.9: Condition aux limites et choix des paramètres de calcul.

III.7. Influence du materiau sur le champ électrique:

En utilisant trois types de materiaux isolants (verre, PVC pur et chargé à 5%, 10%, 15% et 20% en BaTiO₃, PRC pur et chargé à 5%, 10%, 15% et 20% en BaTiO₃).

La fig III.10 représente la distribution et la répartition du champ électrique dans le cas du model plan-plan avec le verre comme materiaux isolant. La distribution et la répartition du champ concernant le PVC et PRC (avant et après charges) sont identiques à ceux relatif au verre.

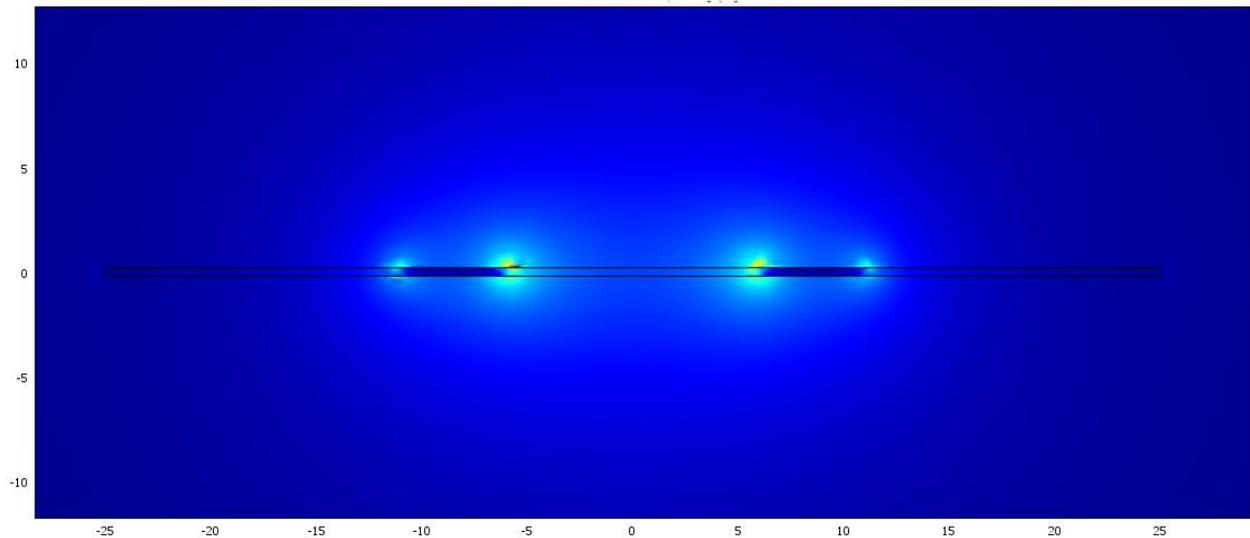
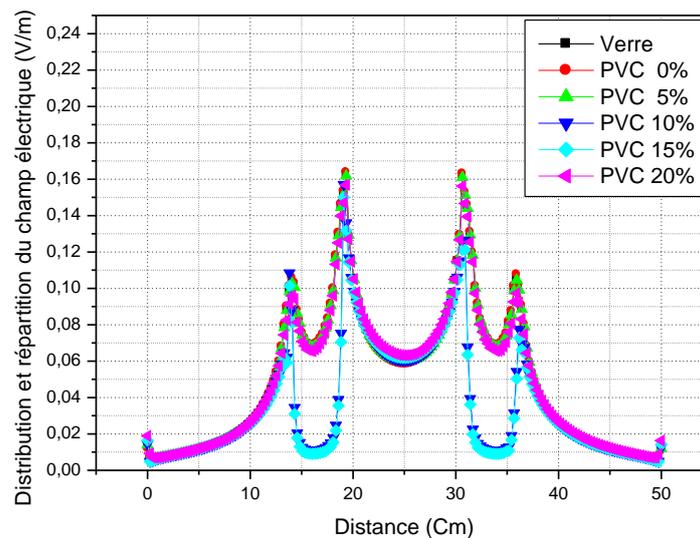


Fig. III.10: *Distribution et répartition du champ électrique dans le cas du model plan-plan (verre).*



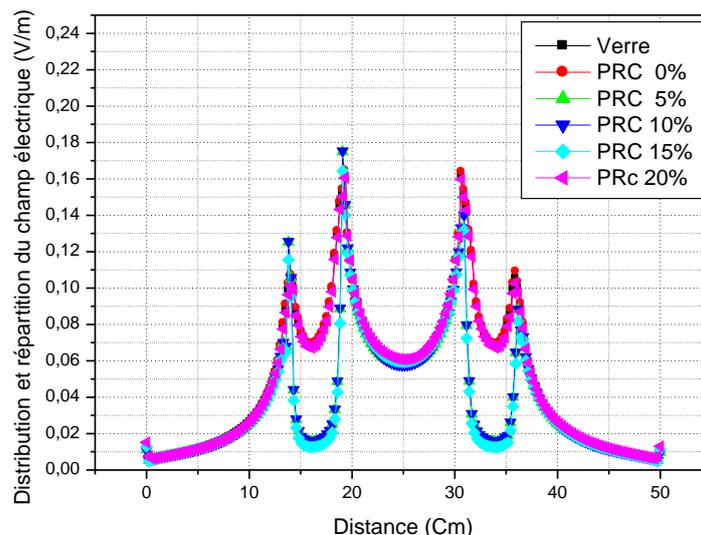


Fig.III.11: Distribution et répartition du champ électrique a) verre-PVC pur et chargé de $BaTiO_3$ et b) PRC et chargé de $BaTiO_3$.

La fig III.11 représente la distribution du champ électrique au niveau de l'interface air –isolant en ce qui concerne les différents matériaux isolants utilisés dans la partie expérimentale PVC/PRC pur et chargé en $BaTiO_3$ et le verre comme matériau largement utilisé dans les isolateurs. Nous observons que la distribution du champ est plus intense au voisinage des extrémités des électrodes, et surtout les extrémités intérieures. Il s'agit d'une forte concentration de la charge, et de l'effet de 'point' dans cette région. A cet effet, la probabilité d'amorçage d'une décharge électrique sera aux niveaux des électrodes.

D'autre part, la valeur maximale du champ électrique augmente à chaque fois que la permittivité diminue. Le dopage des polymères PVC-PRC en $BaTiO_3$ permet d'augmenter la valeur de la permittivité relative, mais en contre partie il réduit la concentration du champ électrique comme le montre le tableau III.4 :

	Verre	PVC 0%	PVC 5%	PVC 10%	PVC 15%	PVC 20%	PRC 0%	PRC 5%	PRC 10%	PRC 15%	PRC 20%
ϵ_r	5.6	4.84	5.89	6.34	7.39	8.73	4.4	4.47	4.43	5.47	6.57
E_{max} [V/m]	0.163	0.164	0.1625	0.157	0.150	0.157	0.165	0.175	0.175	0.164	0.161

Table III.4: Les valeurs maximales du champ électrique avec les différents Composites.

III.8. Influence du materiau sur la distribution de la charge électrique:

Afin d'avoir une idée plus précise de la distribution de la charge sur les conducteurs, nous représentons sur la figure III.11 la composante normale du champ électrique le long de l'axe Ox, avec les deux chemins possibles (Cheminement 1 et Cheminement 2).

Cheminement 1 représente la surface du conducteur exposée à l'air.

Cheminement 2 représente la surface interne proche à l'interface.

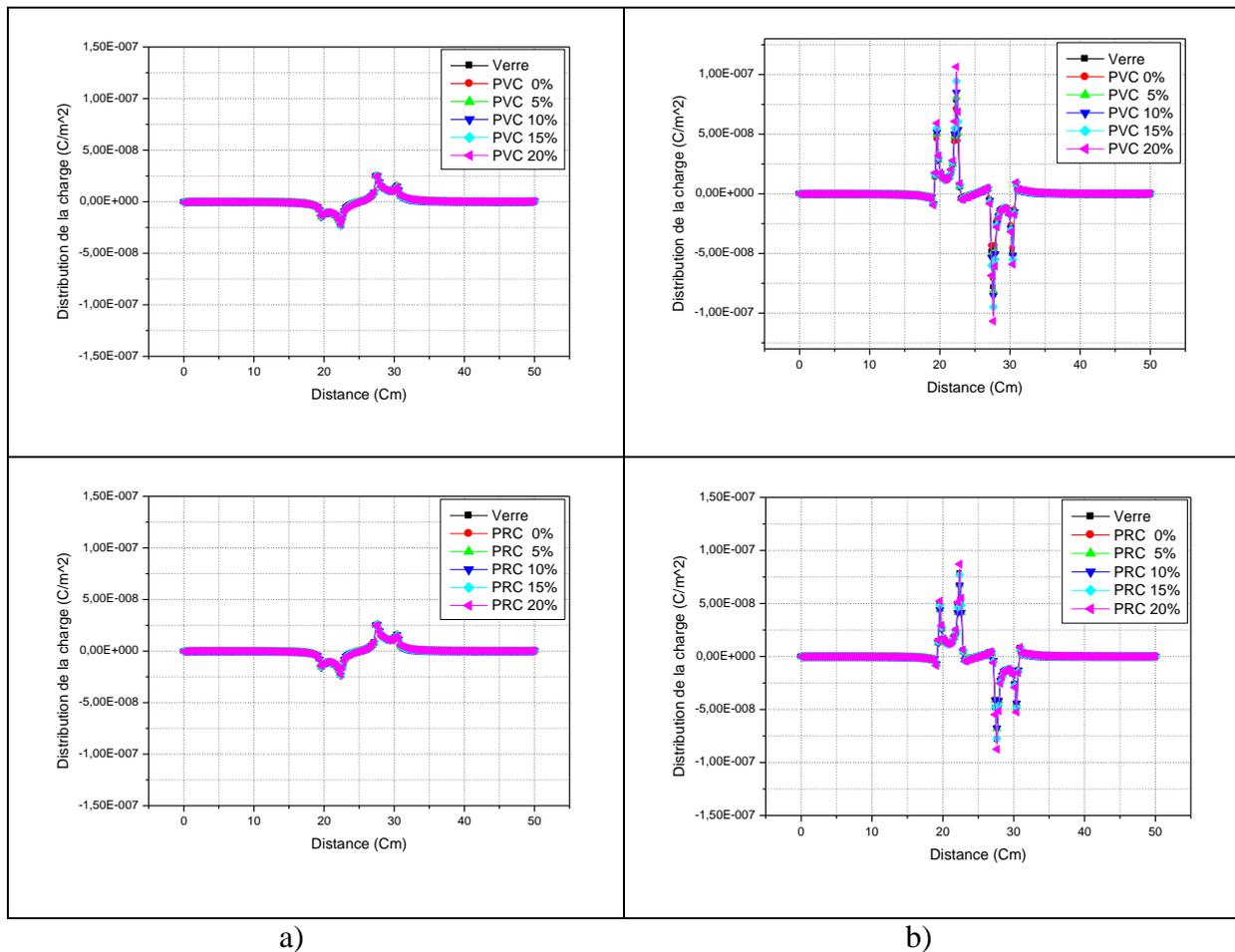


Fig.III.12: *Distribution de la charge à l'interface:*

a) cheminement 1(externe)

b) Cheminement 2(interne).

La fig.III.12 représente la distribution des charges sur l'interface isolant-air. La concentration des charges accumulées sur la surface interne de cette interface est plus grande par rapport à la surface externe. Cela est dû à une permittivité plus élevée du matériau par rapport à celle de l'air ($\epsilon_{isolant} > \epsilon_{air}$).

On fait changer le type de matériaux isolants, la concentration des charges reste constante sur la surface externe (Fig.III.12.a) et elle varie sur la surface interne (Fig.III.12.b). Et plus la charge en BaTiO₃ est importante dans les polymères plus la concentration des

charges accumulées sur la surface interne est grande. On conclu ainsi que le rapport de la quantité de charge entre les deux interfaces dépend aussi de l'épaisseur du matériau.

A cet effet, La figure (III.13) représente les lignes de champ électrique pour une distance inter électrode donnée et à différentes épaisseurs des matériaux (verre, PVC). Ces lignes de champ sont plus intenses dans le cas de l'épaisseur 4mm par rapport l'épaisseur 6mm quelque soit la nature du matériau isolant utilisé (verre, PVC). L'accumulation de charge maximale a été observée dans le cas des faibles épaisseurs.

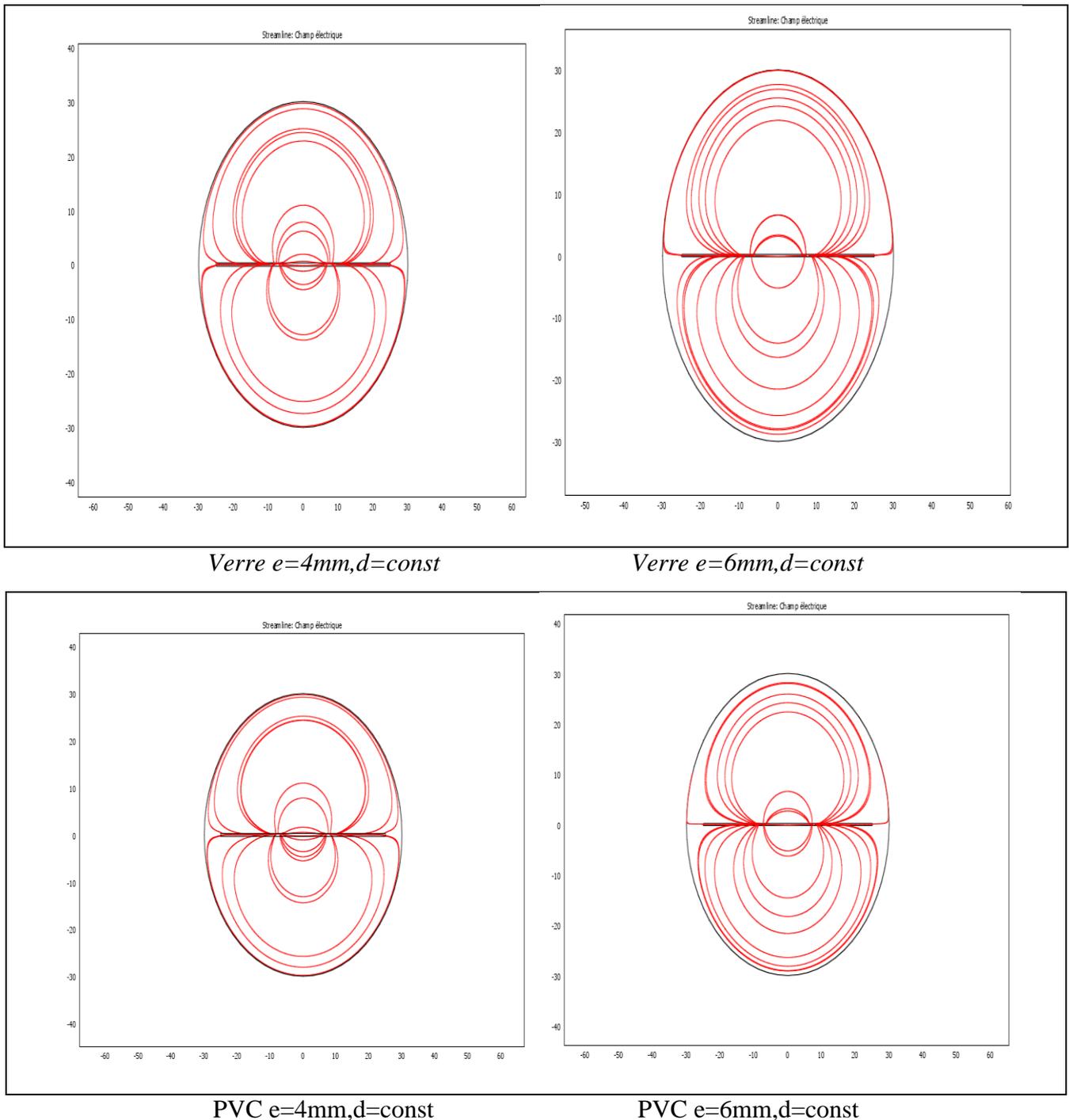


Fig.III.13: *Forme approximative des lignes du champ électrique ($d=const, e$ variable).*

Alors, le rapport de la quantité de charge entre les deux interfaces dépend de l'épaisseur du matériau.

III.9. Courant électrique circulant dans le matériau :

Utilisons dans cette partie du travail le modèle d'Obenaus modifié pour calculer le courant électrique circulant dans le matériau. Pour valider le modèle les résultats obtenus sont comparés à ceux de la littérature.

III.9.1. Courant de décharge en fonction du temps:

L'objectif de cette partie est de procéder à la validation du modèle d'Obenaus modifié qui introduit l'influence du type de matériaux isolants sur le courant de décharge. Nous comparons donc dans cette partie du travail, les valeurs expérimentales et théoriques réalisés par S. Flazi, A.Ouis, M. Hamouda et H. Hadi [34], avec les valeurs du modèle d'obenaus modifié réalisés dans les mêmes conditions que la référence [34]. La tension appliquée a été initialisé à 0kV et la longueur de fuite à $x=0\text{cm}$ et une longueur de fuite de 20 cm.

La forme du courant de décharge est représentée dans la figure III.15, et la valeur maximale de la tension appliquée était de 18.6 kV.

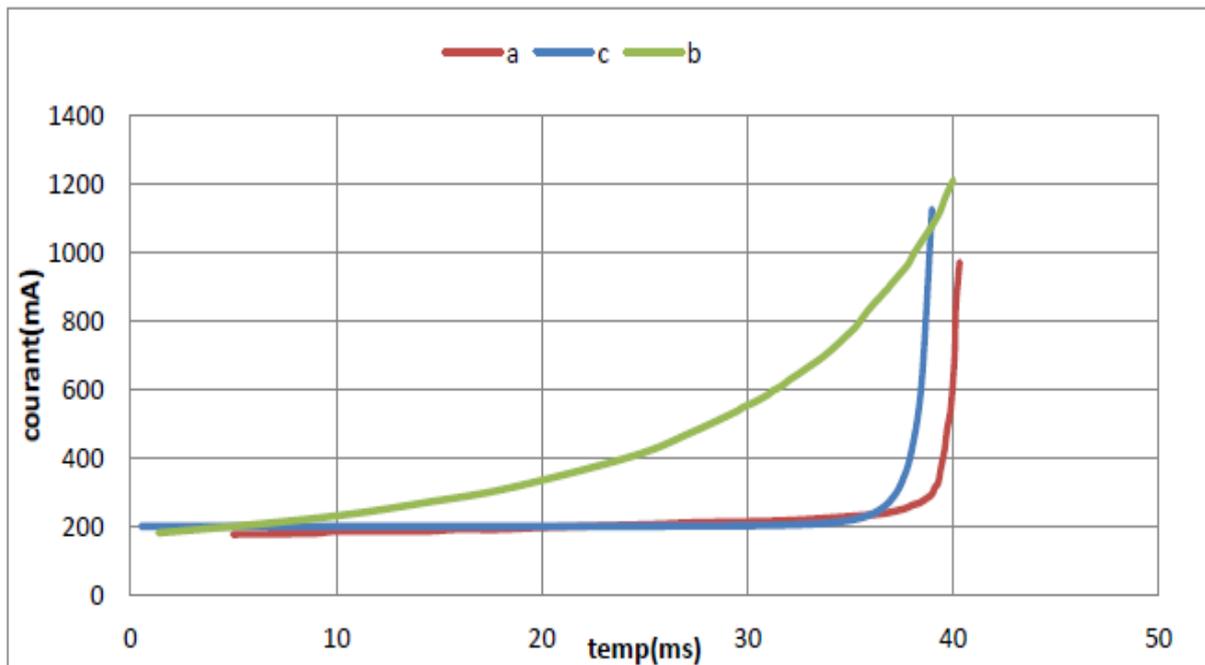


Figure III.14: *Courant de décharge en fonction de temps.*

a) modèle expérimental; b) modèle théorique de S. Flazi, et al [34]; c) le modèle utilisé.

On voit bien que le modèle d'Obenaus modifié rapproche bien la courbe du courant à la courbe expérimentale. Les deux courbes auraient pu être superposées à 40 ms, si l'on

maîtrise le temps théorique du début de la décharge qui dépend aussi de la naissance de l'électron germe de l'arc.

III.9.2 Effet de l'onde impulsionnelle:

De la même manière, nous procédons à la validation du modèle d'Obenaus modifié dans le cas du mode impulsionnel. La tension impulsionnelle est une tension transitoire apériodique qui habituellement croît rapidement jusqu'à une valeur crête, puis décroît plus lentement jusqu'à zéro. La tension délivrée est caractérisée par deux paramètres : τ_1 la durée conventionnelle de front $\tau_1=1.67 (\tau_{90}-\tau_{30})$ et τ_2 la durée de queue à mi-amplitude τ_2 .

Avec τ_{90} est le temps au bout duquel l'impulsion atteint 90% de sa valeur crête U_m et τ_{30} celui correspondant à 30% U_m . Chaque forme d'onde est caractérisée par le rapport $\tau_1-\tau_2$, τ_1 et τ_2 étant exprimé en μs [35-36].

La comparaison du courant de décharge du modèle d'Obenaus modifié avec celui obtenu numériquement par Dhahbi , Ch.A et Dj.M et expérimentalement par Matsuo et al [35-38] est représentée sur la figure III.15.

On peut voir que ce modèle donne des résultats satisfaisants que cela soit en forme ou en amplitude en comparaison avec les autres modèles théoriques. On garde ici aussi les mêmes données expérimentales.

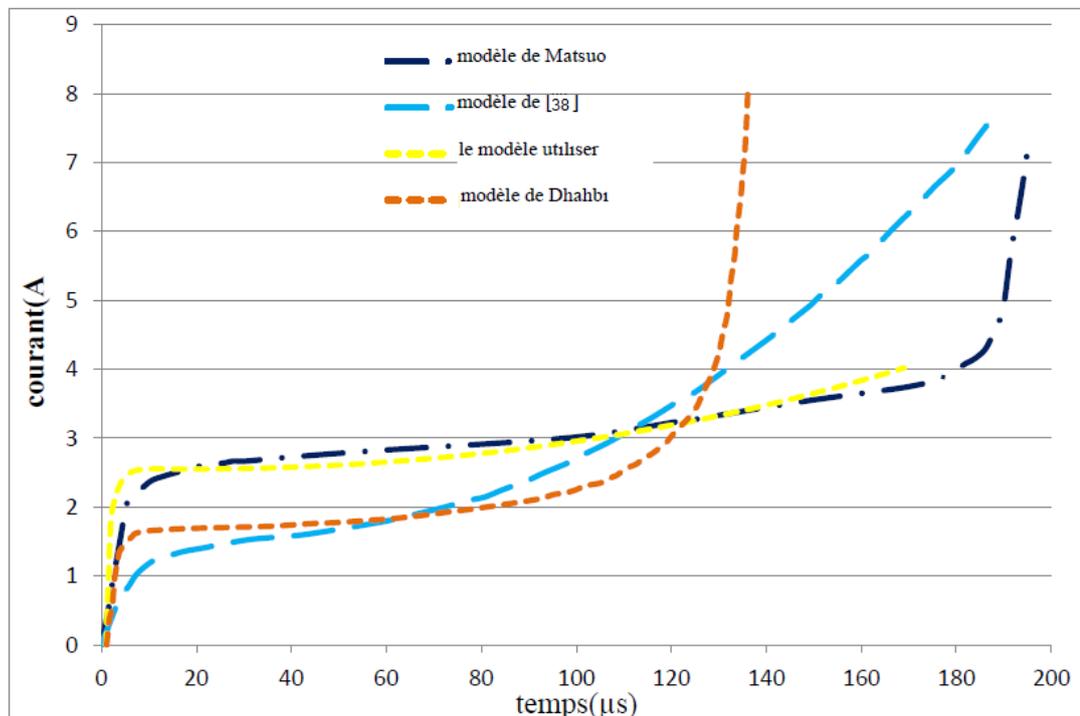


Figure.III.15: Courant de la décharge en fonction du temps, cas d'un isolateur de longueur de fuite 10cm, de largeur 1cm, de résistance linéique $380\Omega/cm$ et une onde de $10/800\mu s$.

On voit bien que la courbe du courant expérimentale de décharge obtenue par Matsiou et celle

théorique obtenue utilisant le modèle d'Obenaus modifié sont superposés entre 0 et 170 ms. Le modèle modifié rapproche bien la courbe théorique à la courbe expérimentale.

III.10. Discussion:

L'influence du type de matériaux isolants sur le phénomène de claquages superficiels d'une part et l'influence de BaTiO₃ d'autre part comme nano-charge sur ce phénomène ont été analysés.

Généralement, la littérature affirme que la distribution du champ, le courant de fuite, les charges d'espace, et la tension de claquage dépendent des propriétés physiques, chimiques et des changements structurels des isolants utilisés [39-41]. A cet effet, de nombreux travaux ont été développés après les travaux de Mr Obenaus [21,22] concernant l'étude du phénomène de claquage superficiel.

Nous exposons dans cette partie de notre travail, (Fig.III.10-11) la distribution du champ électrique en fonction du type d'isolant. Une importante concentration du champ est observée à proximité des électrodes comme il a été montré dans les références [40, 42]. Celle-ci diminue quand la charge augmente puisque la concentration du champ est liée à la valeur de la permittivité relative qui varie selon le taux de charge BaTiO₃ tel qu'il a été expliqué précédemment.

Le principe général des composites consiste à réduire la concentration du champ électrique en augmentant la valeur de la permittivité relative et par conséquent réduire la probabilité de l'amorçage de l'arc. En expérimentale, et selon la littérature, la probabilité de l'amorçage de l'arc électrique augmente avec l'augmentation du taux de charge dans le polymère [43]. Cela peut être expliqué par le piégeage des charges d'espace et de l'accumulation de ces dernières au niveau des interfaces céramique-polymère. Une autre explication est attribuée au rôle des défauts à l'interface entre les nanoparticules et le polymère car la rupture diélectrique est souvent initiée au niveau des défauts [21-44]. Les nouvelles techniques de synthèse des composites ont permis de diminuer considérablement ces défauts et par conséquent réduire la probabilité de ruptures diélectriques [51]. Les figures III.6 III.12, représentant les défauts de structure et l'accumulation des charges d'espace à proximité des électrodes respectivement, confirment les résultats des références [44-45]. Cependant la concentration des charges d'espace a une relation mutuelle avec la trajectoire des lignes de champ et par conséquent sur la concentration du champ électrique comme il est montré sur la figure III.13. Cela peut être interprété par le fait que les lignes de champ électrique partent d'une électrode à l'autre en traversant deux milieux de permittivité différentes composite et air avec $\epsilon_{\text{air}} < \epsilon_{\text{composite}}$. La

différence de permittivité des deux milieux sur la distorsion du champ électrique et par conséquent sur l'accumulation des charges à la surface tel qu'il est indiqué dans [46].

La figure III.14 représente une comparaison de l'évolution du courant de décharge en fonction de temps entre le modèle d'Obenaus modifié, le modèle théorique de S. Flazi et les résultats expérimentaux. On voit bien sur la fig III.14, l'évolution du courant de décharge se produire en deux temps distincts T_1 et T_2 durant la période de contournement T .

Le premier temps (T_1) est caractérisé par une extension importante du pied de la décharge avec une queue concentrée à l'arrière du pied [24-44]. Pendant ce temps, le courant augmente très lentement jusqu'au contournement. Le deuxième temps T_2 est très court ($<T/10$) et correspond à la forte concentration des charges à l'origine de l'arc. La caractéristique décrit donc le comportement dynamique de l'arc. Ces deux temps les substituent Pissolato et Matsuo [48-49] à deux courants l'un circule dans le corps d'arc et l'autre dans la racine de l'arc.

De même, sur la fig III.15, le courant de décharge s'établit en trois étapes. La courbe est de la forme type de la caractéristique $I(V)$ dans un diélectrique. Durant la première étape et à faible champ (ou tension) I , dû aux charges libres présents dans le diélectrique, augmente rapidement. La deuxième étape caractérisé par un palier légèrement croissant, c'est le début de l'avalanche. La troisième étape caractérise l'amorçage de l'arc et le court circuit.

Sur la base des processus fondamentaux contribuant aux phénomènes d'ionisation et d'attachement dans la propagation d'un streamer à travers une surface diélectrique exposé dans le chapitre I, et selon les analyses des résultats expérimentaux développées dans les références [50-52], se sont surtout les accumulations unipolaires des charges à la surface de l'isolant qui sont à l'origine du contournement. Ces charges unipolaires accumulées contribuent à la naissance des électrons germes, qui se multiplient dans le temps à la suite de l'ionisation du diélectrique, aboutissent à l'avalanche électronique, l'arc électrique et enfin le contournement de l'isolateur.

III.11. Conclusion :

En se basant sur l'analyse de nos résultats obtenus et développées dans ce chapitre, nous tirons les conclusions suivantes :

a. Résultats Expérimentaux:

Dans cette partie l'effet de l'addition d'oxyde de titanate de baryum sur les polymères PVC/PRC avec différents pourcentages est analysé et évalué; des échantillons ont été vieillis à 100 °C pendant 200 heures et d'autres sont immergés pendant 72 heures dans l'eau; par la

suite une étude structurelle a été effectuée, et des paramètres diélectriques ont été mesurés et analysés. Cette étude nous a permis de déterminer les résultats suivants :

- L'addition du BaTiO₃ montre une grande influence sur les performances diélectriques des polymères telles que la permittivité relative augmente et les pertes diminuent avec l'augmentation du taux de charge en BaTiO₃ respectivement.
- Le vieillissement thermique a réduit la permittivité relative et a augmenté le facteur de perte et l'indice de perte.
- Du point de vue vieillissement thermique, le BaTiO₃ a ralenti la vitesse de dégradation des polymères. Comme conséquence la charge BaTiO₃ en ratio approprié (entre 5 et 10%at.) prolonge la durée de vie du composite.
- L'absorption d'eau a un effet néfaste sur les propriétés diélectrique du polymère tel que l'augmentation des pertes de la permittivité diélectrique et la réduction de la tension de claquage. L'addition optimale du BaTiO₃ (5% et 10%) réduit l'absorption d'eau.

b. Modélisation:

Le modèle proposé a permis de confirmer l'effet de l'addition d'oxyde de titanate de baryum sur les polymères ainsi que le comportement d'un isolateur ou d'une gaine de câble. Cette étude nous a permis de déterminer les résultats suivants:

- La distribution du champ électrique varie selon le type d'isolant. Il diminue quand le taux de charge (BaTiO₃) augmente mais reste proche de la valeur désirée du polymère pur.
- Les charges d'espace se concentrent près des interfaces conducteur/diélectrique et diélectrique/air.
- Lorsque la valeur de la tension est suffisamment élevée, l'amorçage d'arc est initié autour des extrémités intérieures et principalement dans l'air puisqu'il est le milieu le moins rigide.
- Sous effet du fort champ électrique, une première partie du courant est amorcé à partir de la surface interne du conducteur (électrode HT) en pénétrant l'isolant pour rejoindre l'autre électrode. C'est l'arc électrique. La deuxième partie du courant s'initie de l'électrode pour atteindre l'autre électrode à travers la surface externe. C'est le contournement de l'isolant.

- Le modèle modifié a permis d'étudier le comportement dynamique d'un isolateur sous tension. Les résultats de simulation concordent avec ceux rapportés dans la littérature.
- Sous tension continu, le courant de décharge s'établit en deux temps. Le premier temps est caractérisé par une extension importante du pied de la décharge avec une queue concentrée à l'arrière du pied. Pendant ce temps, le courant augmente très lentement jusqu'au contournement. Le deuxième temps T_2 est très court ($<T/10$) et correspond probablement à la forte concentration des charges à l'origine de l'arc. La caractéristique décrit donc le comportement dynamique de l'arc.
- Sous tension impulsionnelle, le courant de décharge s'établit en trois étapes. Durant la première étape et à faible champ électrique (ou tension) I , dû aux charges libres présents dans le diélectrique, augmente rapidement. La deuxième étape est caractérisée par un palier légèrement croissant, c'est le début de l'avalanche. La troisième étape caractérise l'amorçage de l'arc électrique, le court circuit et par conséquent le contournement du diélectrique.

Références bibliographiques chapitre III

- [1]. S. T. Sushree and A. M. Raichur, "Dispersibility of barium titanate suspension in the presence of polyelectrolytes: A review "J. Disper. Sci. Tech. Vol 29, 2008.
- [2]. M. C. Blanco Lo Pez, B. Rand and F. L. Riley, "The isoelectric point of BaTiO₃", J. Eur. Ceram. Soc. Vol 20, 2000.
- [3]. K. Chonung, J. Zhijian and J. Pingkai, "Investigation of dielectric behavior of thermally aged XLPE cable in the high-frequency range", Polym. Test. Vol 25, 2006.
- [4]. D. Armentrout, M. Kumosa and L. Kumosa, "Water diffusion into and electrical testing of composite insulator GRP rods", IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul. Vol 11, 2004.
- [5]. S. F. Mendes et al., " Effect of filler size and concentration on the structure and properties of poly(vinylidene fluoride)/BaTiO₃ nanocomposites", J. Mater. Sci. Vol 47, 2012.
- [6]. G. Benito et al., "Composites based on HDPE filled with BaTiO₃ submicrometric particles. Morphology, structure and dielectric properties", Polym. Test. 32, 1342 (2013).
- [7]. W. Kasprzak et al., "The influence of barium titanate as a filler in impregnating epoxy resin on chosen electrical parameters of obtained material", Mater. Sci. (Poland), Vol 27, 2009.
- [8]. Y. Ke et al., "Enhanced dielectric properties of BaTiO₃/poly(vinylidene fluoride) nanocomposites for energy storage applications", J. Appl. Phys. Vol 113, 2013.
- [9]. A. Choudhury, "Dielectric and piezoelectric properties of polyetherimide/BaTiO₃ nanocomposites", Mater. Chem. Phys. Vol 121, 2010.
- [10]. N. Edward et al., "Effect of Microwave Frequency on Hydrothermal Synthesis of Nanocrystalline Tetragonal Barium Titanate", J. Phys. Chem. C Vol 112, 2008.
- [11]. W. Camacho and S. Karlsson "Simultaneous determination of molecular weight and crystallinity of recycled HDPE by infrared spectroscopy and multivariate calibration", J. Appl. Polym. Sci. Vol 85, 2002,
- [12]. T. Seguchi et al., "Degradation mechanisms of cable insulation materials during radiation–thermal ageing in radiation environment", Radiat. Phys. Chem. 80, 268 (2011).
- [13]. C. R. Anil Kumar et al., " Investigation into the failure of XLPE cables due to electrical treeing: a physico chemical approach", Polym. Test. Vol 22, 2003.
- [14]. P. Barber, S. Balasubramanian and Y. Anguchamy, "Polymer Composite and Nanocomposite Dielectric Materials for Pulse Power Energy Storage", Materials, Vol 2, 2009.
- [15]. C. Zhang et al., "Electrical and damping behaviors of CPE/BaTiO₃/VGCF composites", Mater. Lett. Vol 59, 2005.
- [16]. Jun-Gyu et al., "Effect of polyethylene glycol on the microstructure and PTCR characteristics of n-BaTiO₃ ceramics", Ceram. Int. Vol 30, 2004.
- [17]. A. Mohammed et al., "Accelerated Temperature and Voltage Stress Tests of Embedded Planar Capacitors With Epoxy–BaTiO₃ Composite Dielectric", J. Electron. Package Vol 8, 2012.
- [18]. S. Andrea, A. Toselli and F. Pilati, "Effects of organic–inorganic hybrid coatings on durability of cross-linked polyethylene", Polym. Degrad. Stab. Vol 96, 2011.
- [19]. J. Paul, H. E. Walther and J. Roots, "Probing the molecular dynamics in XLPE aged at different temperatures by 1H NMR relaxation time measurements", Polym. Degrad. Stab. Vol 97, 2012.
- [20]. A. Nevenka and R. Stojan, "Temperature dependence of electrical conductivity of polyvinyl chloride-barium titanate composite", Bull. Chem. Technol. Maced. Vol 21, 2002.
- [21]. J. F. Lomax et al., "Electrical properties of BaTiO₃ nanoparticles in poly(ether imide)", Smart. Mater. Struct. Vol 21, 2012.
- [22]. I. Jianying and O. ZhaoBenhong, "The Effect of Accelerated Water Tree Ageing on the Properties of XLPE Cable Insulation", IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul. Vol 18, 2011.
- [23]. E. H. Immergut, W. McDowell and J. Brandrup, Polymer Handbook 2, 2003.

- [24]. J. Adam et al., "Ferroelectric properties of composites containing BaTiO₃ nanoparticles of various sizes", *Nanotechnology* Vol 25, 2014.
- [25]. A. Alam and M. H. Azarian, "Temperature and voltage aging effects on electrical conduction mechanism in epoxy-BaTiO₃ composite dielectric used in embedded capacitors", *Microelectron. Reliab.* Vol 51, 2011.
- [26]. J. Orrit et al., "Identification of dipolar relaxations in dielectric spectra of mid-voltage cross-linked polyethylene cables", *J. Electrostat.* Vol 69, 2011.
- [27]. S. Nilsson, T. Hjertberg and A. Smedberg, "Structural effects on thermal properties and morphology in XLPE", *Euro. Polym. J.* Vol 46, 2010.
- [28]. X. Luo, L. Chen and X. Chen, "Preparation and Electromechanical Properties of PVDF Matrix Piezoelectric Composites Containing Highly Oriented BaTiO₃ Whiskers", *J. Mater. Sci. Technol.* Vol 20, 2004.
- [29]. S. P. Mahapatra, D. K. Tripathy and Y. Lee, "Electrical response of microcellular EPDM rubber composites: complex dielectric modulus formalism and current–voltage characteristics", *Poly. Bull.* Vol 68, 2012.
- [30]. C. Lanc et al., "Space charge analysis of electrothermally aged XLPE cable insulation", *J. Non-Cryst. Solids* Vol 353, 2007.
- [31]. A. Boubakeur and Y. Mecheri, "Dielectric and mechanical behaviour of XLPE under continuous thermal ageing", *Ann. Chim. Sci. Mat.* Vol 25, 2000.
- [32]. M. C. Félix and M. Maitrot, "Propriétés diélectriques du chlorure de polyvinyle en très basse fréquence", *J. Rev. Phys. Appl.* Vol 13, 1978.
- [33]. S. Flazi, al., "Dynamic features of DC flashover on polluted insulators," *IET Gener. Transm. Distrib.*, Vol. 1, 2007.
- [34]. H. Matsuo, al. "Gas Density Changes Generated by Local Discharge on an Electrolytic Surface," in 10th International Symposium on High Voltage Engineering, Montréal, 1997.
- [35]. H. Matsuo, T. Yamashita, T. Fujishima and O. Takenouchi, "Propagation velocity and photo-emission intensity of a local discharge on an electrolytic surface" *IEEE Trans. On Diel. and Elec. Insul.* Vol. 3, 1996.
- [36]. N. Dhahbi, "Modélisation Dynamique des Décharges sur les Surfaces d'Isolateurs Pollués sous Différentes Formes de Tensions: Elaboration d'un Critère Analytique de Propagation", Thèse de Doctorat, Ecole Centrale de Lyon, 1998.
- [37]. Y. Guo, X. Jiang, R. Sundararajan, "A dynamic model of DC arc discharge on polluted porcelain insulators at high altitude" *Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP)*, IEEE Conference on, 2015.
- [38]. A.A. Khan, E. Husain, "Porcelain Insulator Performance under Different Condition of Installation around Aligarh", *International Journal of Electrical, Electronic Science and Engineering* Vol:7, 2013.
- [39]. H. Kenichi, Y. Zhu, M. Otsubo, "Studies on erosion of silicone rubber exposed to partial arc discharges", *Polymer Degradation and Stability*, Vol 93, 2008.
- [40]. T. Jing, P. Morshuis, "Surface charge accumulation: an inevitable phenomenon in DC GIS", *IEEE Trans. Electr. Insul.*, Vol. 2, 1995.
- [41]. R. Buckow, S. Schroeder, "Simulation and evaluation of pilot-scale pulsed electric field (PEF) processing", *Journal of food Engineering*, Vol 101, 2010.
- [42]. J.G. Benito, J.M. Tarifa, "Composites based on HDPE filled with BaTiO₃ sub-micrometric particles. Morphology and dielectric properties", *polymer testing*, Vol 32, 2013.
- [43]. S. Farokhi, M. Farzaneh and I. Fofana, "The effect of polarity on dc arc development over an ice surface", *J. Phys. D: Appl. Phys.* Vol 43, 2010.
- [44]. W.B. Zhao, G.J. Zhang, Z. Yan, "Flashover development process across silicon and surface microcosmic phenomena induced by pulsed voltage in air", *J. Phys. D: Appl. Phys.* Vol 40, 2007.

- [45]. R. Timghellette, "Effet d'une interface air-isolant sur le contournement et le courant de fuite apparant à la frequence industrille", Mémoire de Magister, Ecole Nationale Polytechnique, 2007.
- [46]. M. Touzin, al., "Relationships between dielectric breakdown resistance and charge transport in alumina materials-Effects of the microstructure", Journal of the European Ceramic Society, Vol 27, 2007.
- [47]. H. Matsuo, T. Yamashita, "Electrical contact between a local discharge on an electrolyte solution and the solution surface", IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul, Vol 7, 2000.
- [48]. J.P. Filho, "Analyse de contournement d'une surface faiblement conductrice par une décharge électrique alimente en courant continu", Thèse de doctorat, université Paul Sabatier, Toulouse, 1986.
- [49]. A. Zhenlian, C. Liu, X. Chen, F. Zheng, " Correlation between space charge accumulation in polyethylene and its fluorinated surface layer characteristics", J. Phys. D: Appl. Phys. Vol 45, 2012.
- [50]. N. Yajuan, Y. Ke, B. Yuanyuan, "Enhanced Dielectric Performance of BaTiO₃/PVDF Composites Prepared by Modified Process for Energy Storage Applications", IEEE T-UFFC, Vol 62, 2015.
- [51]. S. D. Kimbakala, "Modélisation dynamique des décharges se propageant sur des surfaces isolantes polluées avec des dépôts discontinus sous différentes formes de tension", Thèse de doctorat, Ecole Centrale de Lyon, 2007.

CONCLUSIONS GENERALES ET PERSPECTIVES

Deux composites, PVC et PRC chargés à différentes charges (5%, 10%, 15% et 20%at.) de BaTiO₃ ont été élaborés et analysés après avoir subis des contraintes d'humidité et thermique proches de l'environnement des câbles et des isolateurs en service dans un réseau électrique. Différentes méthodes de caractérisation ont été utilisées. La microscopie électronique à balayage (MEB) nous a permis d'observer la structure et la morphologie des échantillons. Des fissures ont été observées sur les images MEB des échantillons chargés à plus de 10%at. BaTiO₃. L'excès de charge (BaTiO₃) à plus de 10%at. était plutôt néfaste aux composites. L'excès est traduit par des fissures, des pores et des agrégats qui sont sources de charge d'espace, de réservoir d'eau dans l'environnement humide et par conséquent distorsion du champ électrique. L'hétérogénéité de la distribution des éléments chimiques dans ces échantillons a été confirmée par EDS. Il est donc fortement recommandé de maîtriser le processus d'élaboration des échantillons et de limiter la charge à 10%at. BaTiO₃ pour améliorer les propriétés diélectriques. L'analyse par spectroscopie EDX confirme la composition chimique des échantillons.

Les diagrammes des rayons X révèlent qu'aucune nouvelle phase ni changement n'a été détectée quand à la cristallinité du composite que cela soit avant ou après vieillissement. On déduit qu'il n'y a pas d'interaction indésirable à l'interface PRC/BaTiO₃. Les composites restent stables et par conséquent conservent les propriétés désirées des polymères avant d'être chargés au BaTiO₃.

L'analyse effectuée par IFR confirme que les composites ne présentent aucun changements de point vue chimique que cela soit avant ou après être soumis à des contraintes de vieillissement.

L'incorporation du BaTiO₃ à des doses optimales (10%at. BaTiO₃ au plus) améliore significativement les propriétés diélectriques. ϵ_r augmente et $\text{tg}\delta$ décroît quand la teneur en BaTiO₃ augmente mais les valeurs de la permittivité et du facteur de perte restent dans la gamme des valeurs désirées des polymères de bonne qualité du point de vue isolation.

La deuxième partie a été consacrée à la modélisation du mécanisme de claquage superficiel d'un isolant dans lequel a été introduit l'influence du type de matériaux isolant. Les différents modèles statiques, dynamiques et expérimentaux existants dans la littérature ont été décrits.

Les différents critères et théories expliquant le phénomène de pré-claquage et de

claquage d'un isolant ont été exposés. Sur cette base de théories, le modèle d'Obenaus a été modifié et simulé. Les résultats de simulation montrent que le modèle modifié approche bien les résultats expérimentaux trouvés dans la littérature.

Ce travail ouvre également des perspectives de recherche. Par exemple :

Dans le domaine expérimental:

- ✓ Etudier le comportement d'autres composites polymères-céramiques.
- ✓ Etudier des composites à multi-charges (incorporer d'autres charges)
- ✓ Utiliser d'autres méthodes de préparation des composites permettant d'améliorer l'homogénéité de distribution des composés.
- ✓ Appliquer d'autres contraintes sur ces types de composites soit électrique où mécanique..etc.

Dans le domaine de modélisation:

- ✓ Validé la modélisation du modèle Obenaus modifié par des résultats expérimentales et sous les mêmes conditions pour différents matériaux isolants.
- ✓ Etudier le comportement d'autres composites polymères-céramiques.
- ✓ Rapprocher le modèle physique de simulation aux isolateurs réels existants.

Articles publiés dans le cadre de cette thèse

- Lakhdar MADANI, Amine BERRAG, Saad BELKHIAT; BaTiO₃ effects of the dielectric properties of PVC, Annales de Chimie - Science des Matériaux VOL 38/3-4 - 2013 - pp.167-177.
- Lakhdar Madani, Saad Belkhiat, Amine Berrag and Saad Nemdili; Investigation of dielectric behavior of water and thermally aged of XLPE/BaTiO₃ composites in the low-frequency ; range, International Journal of Modern Physics B, Vol. 29, No. 27 (2015) 1550186 (23 pages).

ملخص

يتم دراسة الخصائص العازلة للمواد المركبة (PVC/PRC-BaTiO₃) تحت تأثير الرطوبة وتحلل الحراري على التوالي. لقد تم إعداد عينات المواد المركبة بالطرق العادية. حيث يتوزع مسحوق (BaTiO₃) في مصفوفة البوليمر بتركيزات مختلفة. يتم قياس معاملات العازل العينات مثل السماحية النسبية، عامل فقدان والخسائر عازلة باستخدام المحلل (WAYNE KERR 6420) من نوع في مجال التردد بين (٢٠ هرتز-٣٠٠ هرتز). المقارنة بين النتائج قبل وبعد تطبيق إجهاد، وكذلك التقنيات التصوير الإلكتروني وبالأشعة تحت الحمراء والأشعة السينية قد استخدمت في هذه الدراسة. النتائج المحصل عليها كانت مرضية حيث تم تحسين خصائص العازلة للبوليمرات بإضافة نسبة معينة من (BaTiO₃). علاوة على ذلك قدم البحث نموذج رياضي يبين ظاهرة القوس الكهربائي على سطح العازلة، هذا النموذج يوضح بالتفصيل تأثير نوع المادة على القوس الكهربائي الجزئي، وعلى التيارات الكهربائية الضائعة. أظهرت نتائج المحاكاة في هذا العمل بالمقارنة بنتائج بحوث التجريبية والنظرية أخرى تقارب جيد.

الكلمات الرئيسية :

البوليمرات المركبة، بولي كلوريد الفينيل، الشيخوخة الحرارية. امتصاص الرطوبة، معاملات العزل، تقنيات الوصف والتصوير، نموذج مماثل للعوازل، توزيع الحقل الكهربائي، قوس الجزئي.

Résumé

Les polymères sont des matériaux très utilisés comme isolant dans le réseau de transport et de distribution de l'électricité particulièrement comme gaine de câble et isolateur. Seulement, ces matériaux à l'état pur présentent certains inconvénients tels que les charges d'espaces dues aux défauts et par conséquent la distorsion du champ électrique. Pour améliorer leurs propriétés diélectriques, ils sont chargés aux céramiques. Nous étudions dans cette thèse le vieillissement dans un environnement humide et chaud (proche de l'environnement réel des câbles et des isolateurs) des composites de PVC et de PRC chargé au BaTiO₃. Les produits (grains) de base PVC et PRC (récupéré de l'UNICAB Biskra) sont chargés à 5%, 10%, 15% et 20%at. BaTiO₃. Des échantillons ont été élaborés et analysés après avoir été soumis à l'humidité et aux contraintes thermiques. Différentes méthodes de caractérisations telles que le MEB combiné à l'EDS, la diffraction des rayons X et la Spectroscopie Infra rouge ont été utilisées. Les propriétés diélectriques ont été étudiées. L'analyseur d'impédance RLC (type WAYNE KERR 6420) dans la plage des fréquences (de 20Hz à 300Hz) nous a permis de mesurer le facteur de perte $\text{tg}\delta$, la permittivité diélectrique ϵ_r et l'indice de perte. Les résultats obtenus sont satisfaisants puisque les propriétés diélectriques sont améliorées. Des testes de simulation ont été effectués sur ces échantillons dans l'environnement Comsol-multiphysics, les résultats sont comparables avec ceux d'autres chercheurs.

Mots-clés: Polymères composite, PVC / BaTiO₃, RPC / BaTiO₃, vieillissement thermique, absorption d'eau, caractérisations MEB, DRX et IFR, distribution du champ électrique, arc électrique, ϵ_r , $\text{tg}\delta$.

Abstract

Polymers are widely used as insulating materials in the transport network and electricity distribution especially as a cable sheath and insulator. Only these materials in the pure state have certain disadvantages such as the space charge due to defects and therefore the distortion of the electric field. In order to improve the dielectric properties susceptible to be modified under the effects of thermal aging and water in an absorption environment, polymers are mixed with ceramics. In this paper, the influence of barium titanate (BaTiO₃), on the dielectric properties of XLPE has been studied. Dielectric parameters have been measured using an impedance analyzer RLC (WAYNE KERR 6420 type). Fourier transform infrared (FTIR) spectroscopy, scanning electron microscopy and X-ray diffraction were used as characterization techniques. The study has been carried out on two samples of XLPE. A pure sample of each were studied as a unloaded samples to be compared with samples of 5%wt, 10%wt, 15%wt and 20%wt. BaTiO₃ loaded XLPE. Afterwards, the composites were subject to humidity and to thermal aging. The incorporation of BaTiO₃ 1°C does not modify the crystallinity and morphology of the XLPE and 2°C reduces the space charges therefore the dielectric losses. $\text{tg}\delta$, ϵ_r and loss index are measured. Frequency response analysis has been followed in the frequency range (20–300 Hz). Experimental results show well that BaTiO₃ as nano-filler improves the dielectric properties of XLPE but in excessive content can drive to the cracking and therefore to absorption of water. Simulation results are in agreement with that found in the literature.

Keywords: Composite Polymers, PVC / BaTiO₃, XPLE/ BaTiO₃, thermal aging; water absorption, Dielectric parameters, characterization techniques (SEM, XRD and IFR), the electric field distribution, electrical arc, electric.