### RÉPUBLIQUE ALGÉRIENNE DÉMOCRATIQUE ET POPULAIRE MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPÉRIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE





## ÉCOLE NATIONALE POLYTECHNIQUE

Département de Génie Électrique Laboratoire de Recherche en Électrotechnique



En vue de l'obtention du grade de

# **DOCTEUR EN SCIENCES**

Présentée par Yacine MECHERI

# INFLUENCE DU MODE DE VIEILLISSEMENT THERMIQUE SUR LES PROPRIÉTÉS DU POLYÉTHYLÈNE RÉTICULÉ CHIMIQUEMENT UTILISÉ DANS L'ISOLATION DES CÂBLES MOYENNE TENSION

Soutenue publiquement le 29 Mai 2008 devant la commission d'examen :

A. MEKHALDI	Professeur à l'École Nationale Polytechnique	Président
A. BOUBAKEUR	Professeur à l'École Nationale Polytechnique	Rapporteur
N. BELHANECHE	Professeur à l'École Nationale Polytechnique	Examinatrice
M. NEDJAR	Maître de Conférences à l'UMMTO de Tizi-Ouzou	Examinateur
H. MOULAI	Maître de Conférences à l'USTHB	Examinateur
S. BOUAZABIA	Maître de Conférences à l'USTHB	Examinateur
M. TEGUAR	Maître de Conférences à l'École Nationale Polytechnique	Invité
M. LALOUANI	Chargé de la Qualité à la câblerie ENICA.Biskra	Invité

# AVANT PROPOS

Les travaux de cette thèse ont été menés sous la direction de Monsieur A. Boubakeur, Docteur ÈS-Sciences Techniques, Professeur à l'École Nationale Polytechnique d'Alger (ENP). Qu'il retrouve en ces lignes, l'expression de ma profonde gratitude et mes sincères remerciements pour ses directives précieuses, son soutient constant, sa contribution quant à l'accomplissement de ces travaux.

Je remercie très vivement Monsieur A. Mekhaldi, Professeur à l'École Nationale Polytechnique (ENP), pour l'honneur qu'il me fait en acceptant de présider le jury d'examen.

J'exprime mes plus vifs remerciements à Madame N. Belhanache, Professeur au Département de Génie de l'Environnement à l'École Nationale Polytechnique (ENP), pour l'honneur q'elle me fait en acceptant d'examiner mon travail.

Je tiens à remercier particulièrement Monsieur M. Nedjar, Maître de Conférences à l'Université Mouloud Mammeri de Tizi-ouzou (UMMTO), pour l'honneur qu'il me fait en acceptant de s'associer à la commission d'examen ainsi que l'intérêt qu'il a accordé à ce travail et ses remarques importantes.

Qu'il me soit permis de remercier Monsieur H. Moulai, Professeur à l'Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediene de Bab-Ezzouar (USTHB), qui a bien voulu participer au jury de soutenance.

Toute ma reconnaissance va à Monsieur S. Bouazabia, Maître de Conférences à l'Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediene de Bab-Ezzouar (USTHB). Je lui exprime mes sincères remerceiments pour avoir accepté de juger mon travail en tant que membre de jury d'examen.

Je désire aussi remercier chaleureusement Monsieur M. Teguar, Maître de Conférences à l'École Nationale Polytechnique (ENP), pour l'honneur qu'il me fait en acceptant de faire partie du jury d'examen.

J'adresse mes sincères remerciements à Monsieur A. Diche, Chargé de cours à l'Université Mouloud Mammeri de Tizi-ouzou (UMMTO), pour avoir lu et apporté ses propositions dans la finalisation du manuscrit de ma thèse.

Les travaux de cette thèse se sont déroulés dans le cadre d'une collaboration entre le Laboratoire de Haute Tension, actuellement inclus dans le Laboratoire de Recherche en Electrotechnique (LRE) de l'ENP et les Laboratoires Assurance et Qualité des sociétés de câbles : ENICA.Biskra et CABEL d'Alger. Que Monsieur D. Abdesslam, Directeur Technique au Département Technologie et Contrôle Qualité de la câblerie ENICA.Biskra, Monsieur M. Lalouani, Chef de service Laboratoire et Monsieur S. Boudjema, Chef de section Contrôle Moyenne Tension de la même câblerie, trouvent en ces quelques mots, ma profonde reconnaissance, pour l'accueil qu'il m'ont réservé au sein de l'entreprise, pour le soutient qu'ils m'ont apporté le long de mon stage de formation et pour m'avoir facilité l'accès aux matériels et appareils du Laboratoire.

Je suis très reconnaissant à Messieurs A. Rezig et F. Kahloul, Techniciens à la section Moyenne Tension du même département pour l'aide constante qu'il m'ont apportée durant le déroulement des essais et qui ont su me faire bénéficier de leur expérience afin d'accomplir ces travaux dans un climat d'amitié.

Mes vifs remerciements vont aussi à Messieurs S. Agrine et Y. Benaissa respectivement, Technicien au Département Technologie et Contrôle Qualité et Chef du Centre de Documentation de la même entreprise pour leur aide et soutient lors de mes séjours à Biskra.

Je tiens à remercier Monsieur R. Khaili, Ex Directeur du Développement et Management Qualité de la câblerie CABEL d'Alger, pour sa bienveillance et pour m'avoir facilité l'accès aux équipements du Laboratoire Contrôle et Qualité de la câblerie.

Je tiens également, à exprimer mes remerciements à M. Abdelazziz, N. Bécha, L. Arar, M. Ziouèche, Z. Khemar, et tout le personnel de L'ENICA.Biskra pour l'ambiance chaleureuse et amicale qu'ils ont su créer tout au long de mon séjour à Biskra.

En fin, je remercie particulièrement tout le personnel de la Bibliothèque de l'ENP.

Dédicace

A la mémoire de mon père.

A ma mère,

A ma femme et mon fils Adem.

A mes frères et ma soeur.

A toute la famille.

### <u>ملخص:</u>

تدخل هذه الأطروحة ضمن موضوع البحث المتعلق بتزمين الكوابل الكهربائية ذات التوتر المتوسط (ت.م) المعزولة بمادة البوليتيلان المعرق كيميائيا (ب.م.ك) (P.R.C)، تحت تأثير الإجهاد الحراري. يشكل التزمين الحراري بنوعيه المستمر و المتقطع الدوري عاملا أساسيا في معرفة الاستجابة الكهروعزلية و الميكانيكية للمواد العازلة، وعلى سبيل الذكر البوليتيلان المعرق كيميائيا، وكذا في تقبيم مدى التحمل الحراري للكوابل الكهربائية و حساب مدة حياتها العملية. لدراسة هذا الموضوع، أموف كيميائيا، وكذا في تقبيم مدى التحمل الحراري بلكوابل الكهربائية و حساب مدة حياتها العملية. لدراسة البوليتيلان المعرق كيميائيا، وكذا في تقبيم مدى التحمل الحراري للكوابل الكهربائية و حساب مدة حياتها العملية. لدراسة هذا الموضوع، أجرينا في المخبر تجارب مسرعة للتزمين الحراري بنوعيه و محاكية للظروف العملية لتشغيل الكوابل، وحيث تم إخضاع عدة عينات من كابل ال(P.R.C) الالاري بنوعيه و محاكية للظروف العملية لتشغيل الكوابل، مدين تم إخضاع عدة عينات من كابل ال(P.R.C) و للاوابل الكهربائية و حساب مدة حياتها العملية. لدراسة فذا الموضوع، أجرينا في المخبر تجارب مسرعة للتزمين الحراري بنوعيه و محاكية للظروف العملية لتشغيل الكوابل، وحيث تم إخضاع عدة عينات من كابل ال(P.R.C) و لاري بنوعيه و محاكية الظروف العملية لتشغيل الكوابل، وين بي تم إخضاع عدة عينات من كابل ال(P.R.C) لهذا 2000 ساعة والمتقطع لمدة 20 دور حراري، و هذا وفقا لمنشور 216 لتوصيات اللجنة الدولية للكهروتقنية (EEI 216). لهذا الغرض، اختيرت أربع درجات حرارة مختلفة و متغيرة من 80°م إلى 140°م. تكمن مساهمتنا في هذه الأطروحة في عرض دراسة مقار نية حول تأثير نوعي التزمين و منغيرة وراري السالف الذكر على الحصائص الكهروعزلية والميكانيكية لمادة ال (P.R.C). المعزول 210 مين ما 80°م إلى 140°م. تكمن مساهمتنا في هذه الأطروحة في عرض، اختيرة من 80°م إلى من 200°م. المتورية والموض عار الروري المحارم، اختيرة من 80°م إلى 140°م. الكهروعزلية والميكانيكية لمادة ال (P.R.C). المتومين قائي من 80°م إلى 140°م. تكمن مساهمتنا في هذه الأطروحة في عرض دراسة مقار نية حول تأثير نوعي التزمين الوربان وراري السالف الذكر على الحا°م. الكهروعزلية والميكانيكية لمادة ال (P.R.C). المتومية كارك الكوابل ذات ومتغيرة ما 80°م إلى المى 140°م.

### Résumé :

Notre thèse entre dans la thématique de recherche sur le vieillissement des câbles de moyenne tension (MT) isolés au polyéthylène réticulé chimiquement (PRC) sous l'action de la contrainte thermique. Le mode de vieillissement thermique appliqué aux câbles en service constitue un facteur de première importance dans la connaissance du comportement diélectrique et mécanique des matériaux isolants en l'occurrence le polyéthylène réticulé chimiquement et de la fiabilité des câbles électriques. Pour ce faire, des essais accélérés de simulation de vieillissement thermique continu et cyclique respectivement durant 2000 heures et 20 cycles de chauffage et de refroidissement, suivis des essais diélectriques et mécaniques de diagnostic ont été effectués sur des échantillons de câbles en PRC 18/30 kV (produits par ENICA.Biskra) à quatre températures différentes variant de 80°C à 140°C et ce, conformément aux recommandations de la CEI 216. Notre investigation se voulait comparative du comportement diélectrique et mécanique du PRC constituant l'enveloppe isolante des câbles 18/30 kV sous l'influence des deux modes de vieillissement précités.

<u>Mots clés</u>: Vieillissements thermiques continu et cyclique, Polyéthylène Réticulé Chimiquement (PRC), Propriétés diélectriques, Propriétés mécaniques, Fiabilité des câbles isolés au PRC.

### Abstract:

Our thesis comes into the thematic of research on the aging of Cross-Linked Polyethylene (XLPE) Medium Voltage (MV) insulated cables under thermal stress. The conditions of thermal ageing applied to cables under service is a factor of primary importance for the knowledge of the dielectric and mechanical behaviour of insulation materials, for instance Cross-Linked Polyethylene and the reliability of electrical cables. To investigate on this effect, continuous and cycled accelerated thermal ageing tests, followed by dielectric and mechanical diagnosis ones on 18/30 kV XLPE cable samples (produced by ENICA.Biskra) were performed in accordance with IEC standard 216 at four levels of temperature ranging from 80°C to 140°C during 2000 hours and 20 thermal cycles, respectively. In a comparative investigation, the dielectric and mechanical behaviour of XLPE used as insulation in 18/30 kV cables under the two conditions of thermal aging above-mentioned is showed.

<u>*Key words:*</u> Continuous thermal ageing, Cycled, Cross-Linked Polyethylene (XLPE), Dielectric properties, Mechanical properties, Reliability of XLPE insulated cables.

*كلمات مفاتيح*: تزمين حراري مستمر، متقطع دوري، البوليتيلان المعرق كيميائيا (بم ك)، خصائص كهربائية عازلة، خصائص ميكانيكية، مدة حياة الكوابل المعزولة بمادة ال (بم ك).

# SOMMAIRE

Page

<u>CHAPITRE I</u> – POLYETHYLENE REFICULE CHIMIQUEMENT	9
I.1 Les polymères isolants	
I.2 Les polyéythylènes	
I.3 LE POLYÉTHYLÈNE RÉTICULÉ CHIMIQUEMENT	15
I.3.1 Réactions secondaires de la réticulation	19
I.3.2 L'antioxydant et ses produits de décomposition	
I.3.3 Morphologie du polyéthylène réticulé chimiquement	23
I.3.4 Procédés de fabrication des câbles isolés au PRC	24
I.3.4.1 Réticulation à la vapeur d'eau	
I.3.4.2 Réticulation en gaz inerte chauffé	
I.3.4.3 Réticulation par radiation	
I.3.4.4 Réticulation aux ultrasons	25
I.3.4.5 Procédé de réticulation SIOPLAS	
I.3.5 Avantages du PRC sur le PE	
I.3.6 Inconvénients du PRC	29
BIBLIOGRAPHIE	31
CHAPITRE II - VIELLISSEMENT THERMIQUE DES MATÉRIAUX POLY	YMÈRES 37
II.1 ASPECTS THÉORIQUES DU VIEILLISSEMENT	

II.1 ASPECTS THÉORIQUES DU VIEILLISSEMENT
II.2 VIEILLISSEMENT THERMIQUE
II.2.1 Vieillissement physique
II.2.1.1 Vieillissement physique par transfert de masse
i) Pénétration de solvants40
ii) Perte d'adjuvants42

II.3.1.2 Vieillissement physique sans transfert de masse
i) Fissuration sous contrainte en milieu tensioactif
ii) Vieillissement physique interne
iii) Chocs thermiques
II.2.2 Vieillissement chimique
i) Coupure de chaînes statistiques
ii) Dépolymérisation47
iii) Réticulation
iv) Oxydation50
II.3 ENDURANCE THERMIQUE DES MATÉRIAUX POLYMÈRES
II.3.1 Généralités54
II.3.2 Principe de la détermination de l'endurance thermique des isolants
II.3.3 Choix des températures de vieillissement
II.4 DURÉE DE VIE ET FIABILITE DES SYSTÈMES D'ISOLATION
II.4.1 Modèles de durée de vie
II.4.2 Cas d'une seule contrainte
II.4.2.1 Modèle de puissance inverse
II.4.2.2 Modèle exponentiel59
II.4.2.3 Modèle d'Arrhenius
II.4.2.4 Modèle d'Eyring61
II.4.3 Cas de contraintes multiples
II.4.3.1 Modèle de Fallou62
II.4.3.2 <i>Modèle de Ramu</i>
II.4.3.3 Modèle de Simoni63
II.4.3.4 Modèle probabilistique de Montanari
II.4.3.5 Modèle de Crine
BIBLIOGRAPHIE

# 

III.1 Présentation du cable	.77
III.1.1 Constituants du câble	•77
III.1.2 Propriétés du compound	.79
III.2 DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX	.79
III.2.1 Description de la station de vieillissement thermique	.79
III.2.2 Mesure de la tension seuil d'apparition des décharges partielles	80
III.2.3 Mesure du facteur de pertes diélectriques et de la permittivité relative	85
III.2.3 Mesure de l'allongement à la rupture et de la résistance à la traction	•89
BIBLIOGRAPHIE	.91

# 

IV.1.5 Variation du facteur de pertes diélectriques en fonction de la température. 133
IV.1.6 Influence du vieillissement thermique sur la tension seuil d'apparition des
décharges partielles139
IV.2 Influence du vieillissement thermique sur les propriétés mécaniques
DU PRC142
BIBLIOGRAPHIE145
CONCLUSION GÉNÉRALE

### ANNEXE

# INTRODUCTION

**L**A TENDANCE actuelle, et sûrement dominante dans les années futures, est de Véhiculer l'énergie électrique via des câbles ensevelis (souterrains) ou sous-marins. Cette évolution du marché est la conséquence directe de fortes pressions écologiques et environnementales dans le but de réduire les lignes aériennes. Le besoin en énergie allant croissant, l'agrandissement du réseau électrique est capital, notamment en zones urbaines.

Il ne fait pas de doute que le développement des matériaux synthétiques polymères présente une importance considérable pour l'industrie des câbles de transport d'énergie électrique, par suite des propriétés particulières de ces matériaux. Le polyéthylène réticulé chimiquement (PRC) ou Cross-Linked Polyethylene (XLPE) dans la littérature anglo-saxonne est devenu un matériau de choix dans l'isolation des câbles haute tension (HT) de nouvelle génération à cause de ses performances diélectriques, physico-chimiques, mécaniques et thermiques [1, 2].

L'utilisation du PRC comme isolant des câbles électriques de haute tension remonte aux années soixante. En effet, le premier câble PRC 77 kV a été fabriqué et installé au Japon en 1962 [3, 4]. Les progrès constants dans la mise en oeuvre des polymères propres et stabilisés (granulés extra clean, agents de réticulation et stabilisants d'antioxydant) et la maîtrise de la technologie de fabrication des câbles (triple extrusion, étanchéité gonflable, réticulation à l'azote sous haute pression) ont permis de surmonter les problèmes (présence d'eau, de microcavités, d'impuretés dans l'isolant et aussi de malformations à l'interface semi-conducteur/isolant) rencontrés autrefois et d'améliorer les conditions d'opération des câbles isolés au PRC. En effet, actuellement les câbles en PRC sont utilisés dans le domaine du transport d'énergie pour des tensions allant jusqu'à 500 kV et la température tolérée en service avoisine les 90°C [5 - 9].

Cependant, malgré les progrès réalisés dans le domaine des procédés de construction des câbles en PRC et le soin porté lors de leur mise en œuvre, certaines difficultés en termes de durée de vie se posent encore à travers le monde [10-24]. En effet, les limitations techniques des câbles haute tension, à isolation synthétique repose sur des incertitudes concernant leur fiabilité. Les propriétés fonctionnelles des câbles se détériorent au cours de leur utilisation ; ce phénomène est connu sous le nom de vieillissement.

Soumis à la contrainte électrique en service, les câbles isolés au PRC peuvent être également soumis au vieillissement thermique. La contrainte thermique est l'une des contraintes de service les plus sévères pouvant affecter sérieusement les propriétés du matériau constituant l'enveloppe isolante en les dégradant et réduisant ainsi la durée de vie des câbles.

Le vieillissement thermique peut se manifester sous deux modes différents : continu ou cyclique. Dans le premier mode, le câble est soumis à l'action de la température normale de service alors que dans le second, le câble subit des chocs thermiques suite aux régimes critiques transitoires (court-circuit, surcharge) caractérisés par de hautes températures. Les conditions de vieillissement thermique appliquées aux câbles en service constituent des facteurs de premières importances dans la connaissance de leur comportement et leur fiabilité.

La fiabilité des câbles isolés au PRC a été et continue d'être une préoccupation majeure des producteurs câbliers et des exploitants des réseaux de transport d'énergie électrique. De nombreux travaux ont été effectués sur ce sujet qui demeure un thème d'actualité [25-50].

L'étude qui nous a été proposée entre dans le cadre d'un projet de recherche programmé par le Laboratoire de Haute Tension, actuellement inclus dans le Laboratoire de Recherche en Électrotechnique (LRE) de l'École Nationale Polytechnique (ENP) en collaboration avec l'Entreprise Nationale des Industries des Câbles de Biskra (ENICA.Biskra) et concerne le vieillissement des câbles de moyenne tension isolés au polyéthylène réticulé chimiquement (PRC). Les échantillons de câbles nous ont été fournis par la même firme soutenant le programme de recherche. La pérennité des câbles est liée à la connaissance de leur comportement sous les conditions (contraintes) de service. Notre investigation se voulait comparative du comportement diélectrique et mécanique du PRC constituant l'enveloppe isolante des câbles MT 18/30 kV sous l'action de la contrainte thermique continue et cyclique. Pour ce faire, des essais de simulation de vieillissement thermique continu et cyclique respectivement durant 2000 heures et 20 cycles de chauffage et de refroidissement, suivis des essais diélectriques et mécaniques de diagnostic ont été effectués sur des échantillons de câbles en PRC 18/30 kV à quatre températures différentes variant de 80°C à 140°C.

La présente étude, consiste dans un premier chapitre, à présenter les matériaux poly-oléfiniques en l'occurrence le polyéthylène et le polyéthylène réticulé chimiquement, devenus des matériaux de choix dans l'isolation des câbles haute tension. La réticulation thermo-chimique du polyéthylène et les procédés de mise en œuvre des câbles électriques extrudés au PRC sont également exposés.

Dans le deuxième chapitre, nous rappelons les mécanismes et les processus physico-chimiques intervenant lors du vieillissement thermique du polyéthylène réticulé chimiquement. Nous présentons également les méthodes d'essai et les techniques analytiques de caractérisation des polymères. Des modèles de durée de vie des systèmes d'isolation dans leurs conditions d'utilisation sont donnés.

Le troisième chapitre est consacré aux techniques expérimentales où nous donnons une description détaillée des câbles 18/30 kV isolés au PRC, de la station d'essai de vieillissement thermique, des dispositifs de mesure et de caractérisation ainsi que les techniques expérimentales que nous avons utilisées au niveau du Laboratoire Contrôle de Qualité de la Câblerie ENICA.Biskra.

Les résultats expérimentaux relatifs à l'effet des conditions de vieillissement thermique sur les propriétés diélectriques et mécaniques du PRC constituant l'enveloppe isolante des câbles MT 18/30 kV sont exposés dans le quatrième chapitre. Dans une approche comparative, les résultats obtenus sous les deux modes de vieillissement thermique sont discutés et analysés avec proposition d'interprétations.

Dans la conclusion, sont rassemblés les principaux résultats auxquels nous sommes parvenus. Nous présentons aussi des perspectives de travail concernant une meilleure approche du vieillissement et de la fiabilité des câbles de transport d'énergie électrique.

### **BIBLIOGRAPHIE**

- D. K. Das-Gupta, "Conduction Mechanisms and High Field Effects in Synthetic Insulating Polymers", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 4, N°. 2, pp. 149-156, 1997.
- [2] S. B. Dalal, R. S. Gorur, M. L. Dyer, "Aging of Distribution Cables in Service and its Simulation in the Laboratory", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 12, N°. 1, pp. 39-146, 2005.
- [3] R. Arrighi, "From Impregnated Paper to Polymeric Insulating Materials in Power Cables", Intern. Conf. Polymer Insul. Mater. in Power Cables, JICABLE 84. IEEE Trans. EI, Vol. 21, N°. 1, pp. 7-18, 1986.
- [4] B. Yoda, K. Muraki, "Development of EHV Cross-linked Polyethylene Insulated Power Cables", IEEE Transactions on Power Apparatus and systems, Vol. PAS 92, N°. 2, pp. 506-513, 1973.
- [5] T. Sato, K. Muraki, N. Sato, Y. Sekii, "Recent Technical Trends of 500 kV XLPE Cable" IEEE Power Cable and Accessories 10 kV – 500 kV, pp. 59-63, November 1993.
- [6] K. Kaminaga, M. Ichihara, M. Jinno, T. Tanabe, S. Fukunaga, M. Kanaoka, H. Takehana, "Development of 500 kV XLPE Cables", Electrical Engineering in Japan, Vol. 118, N°. 1, pp. 28-39, 1997.
- [7] K. Osozawa, "500 kV Aluminium-Sheathed XLPE Cable in 96 m Vertical Shaft", IEEE Power Engineering Society Winter Meeting, Vol.1, pp. 670-673, 2000.
- [8] L. H. Gross, J. S. Furno, C. G. Reid, A. Mendelsohn, "XLPE Materials for Extruded High/Extra-High Voltage Transmission Cables" IEEE Conference Record of International Symposium on Electrical Insulation, pp. 538-542, Arlington, Virginia, USA, June 7-10, 1998.

- [9] T. Kubota, Y. Takahashi, S. Sakuma, M. Watanabe, M. Kanaoka, H. Yamanouchi, "Development of 500 kV XLPE Cables and Accessories for Long Distance Underground Transmission Line. Part 1: Insulation Design of Cables", IEEE Trans. on Power Del., Vol. 9, N°. 4, pp. 1738-1749, October 1994.
- [10] R. D. Nabour, "The Influence of Water on the Electrical Strength of Polymeric Cable Insulation", Report of Electricity Council Research Centre, R 1877, 1984.
- [11] T. Fukuda, Z. Iwata, S. Irie, M. Matsuki, S. Fujiki, Y. Takayama, K. Ishihara, "Progress in Technology for High-Voltage Power Cables Insulated with Cross-linked Polyethylene", Furukawa Review, N°. 5, pp.1-18, 1987.
- [12] T. Fikuda, "Technological Progress in High-Voltage XLPE Power Cables in Japan -Parts I and II", IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 4, N°. 6, pp. 9-14 and 15-20, December 1988.
- [13] S. Pélissou, R. L'Ecuyer, P. E. Beaudoin, G. Sarfi, J. P. Crine, "Caractérisation de câbles extrudés vieillis en service", Rapport final IREQ-4742, Décembre 1990.
- [14] J. C. Chan, E. T. Cometa, M. D. Hartley, L. J. Hivala, "Field Failure Analysis of Medium Voltage XLPE Insulated Power Cables", IEEE Int. Symp., Toronto, Canada, pp. 277-280, 1990.
- [15] S. Pélissou, "Impurities in XLPE Cables", IEEE Int. Symp. Elect. Insul., pp. 339-342, 1990.
- [16] E. F. Steennis, W. Boone, A. Montfoort, "Water Treeing in Serviced Aged Cables, Experience and Evaluation Process", IEEE Trans. Pow. Del., Vol. 5, N°. 1, pp. 40, 1990.
- [17] J. P. Crine, S. Pélissou, J. L. Parpal, "Influence of Insulation Morphology, Impurities and Oxydation on some Electric Properties of Cables", IEEE Transaction on Electrical Insulation, Vol. 26, N°. 1, pp. 140-145, 1991.
- [18] J. L. Parpal, J. P. Crine, "Study of Semiconductor Impurity Diffusion in XLPE Cable Insulation under Electrical Insulation", IEEE Power Cable and Accessories 10 kV-500 kV, pp. 153-156, November 1993.

- [19] Y. Sekii, T. Kogure, T. Maeno, "Influence of Physical Properties and Peroxide Decomposition Products on the Space Charge Formation in XLPE and EPDM", IEEE Proceeding of the 5<sup>th</sup> International Conference on Properties and Applications of Dielectric Materials, pp. 132-136, Seoul - Korea, May 25-30, 1997.
- [20] K. Steinfeld, W. Kalkner, "Stress Induced Electrochemical Degradation of the Inner Semicon Layer of XLPE-Insulated Cables and Model samples", IEEE Transaction on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 5, N°. 5, pp. 774-778, October 1998.
- [21] S. Pélissou, S. St-Antoine, "Influence of Cable Processing on the Insulation Impurity Content", Conference Record of the International Symposium on Electrical Insulation, pp. 97-100, Arlington, Virginia USA, June 7-10, 1998.
- [22] U. H. Nilsson, R. C. Dammert, A. Campus, A. Sneck, H. J. Jansson, "Morpholgy of Polyethylene for Power Cable Insulation: Effects of Antioxidant and Cross-linking", IEEE International Conference on Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics, pp. 365-367, Vasteras Sweden, 1998.
- [23] B. Meola, L. Nele, L. Giorleo, "Technological Characterisation of Thermo-shrinking Cross-linked Polyethylene by Destructive and Non Destructive Techniques", Journal of Materials Processing Technology, Vol. 133, pp. 353-358, 2003.
- [24] J. V. Gulmine, L. Akcerlud, "Correlations between the Processing Variables and Morphology of Cross-linked Polyethylene", Journal of Applied polymer Science, Vol. 94, pp. 222-230, 2004.
- [25] P. Belloc, B. Fallou, "Étude de vieillissement thermique des matériaux utilisés dans la construction des câbles électriques", RGE, N°. 1, pp. 243-246, Janvier 1970.
- [26] C. Simon, "Recherche de la fiabilité des câbles exposés à des contraintes du gradient électrique", RGE, tome 80, N°. 11, pp. 831-836, 1971.
- [27] B. Fallou, C. Burguiere, J. F. Morel, "First approach on Multiple Stress Accelerated Life Testing of Electrical Insulation", Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, pp. 621-628, October 1979.
- [28] L. Simoni, "A General Approach to the Endurance of Electrical Insulation under Temperature and Voltage", IEEE Trans. Elect. Insul., Vol. 16, N°. 4, pp. 277-289, August 1981.

- [29] A. Motori, F. Sandrolini, G. C. Montanari, L. Gherardi, "A contribution to the Investigation of Aging Mechanisms in XLPE Cables", IEEE Int. Symp. on Electr. Insul., Washington D. C, pp. 1-5, June 8 – 11, 1986.
- [30] C. Simon, "Champs de seuil et fiabilité des câbles haute tension", Journées d'Études Internationales sur les Câbles d' Énergie à Isolant Synthétique, pp. 226-232, 1987.
- [31] Kiati and al., "Long Term Aging Phenomena of XLPE Cable", JICABLE '87, pp. 446, 1987.
- [32] G. C. Montanari, G. Pattini, L. Simoni, "Long-term Behaviour of XLPE Insulated Cable Models", IEEE Transactions Power Delivery, Vol. 2, N°. 3, pp. 596-602, July 1987.
- [33] R. Fournie et al., "Essais d'évaluation et méthodes de diagnostic pour estimer la durée de vie et détecter les défaillances des matériels électriques", Bulletin de la Direction des Etudes et Recherches, EDF, Série B, N°. 4, pp. 45-59, 1988.
- [34] J. Peinan, W. Shude, D. Wuyi, "Estimation and Analysis of XLPE Cable Life in China" IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol. 4, pp. 654-667, 1988.
- [35] A. Motori, F. Sandrolini, G. C. Montanari, "Chemical, Physical and Microstructural Properties of Thermally Aged XLPE Cables Models", IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol. 16, pp. 764 -768, 1988.
- [36] L. Simoni, "Application of a New Geometrical Approach to Determination of Combined-Stress Endurance of Insulating Materials", IEEE Trans. Elect. Insul., Vol. 23, pp. 489-492, 1988.
- [37] V. K. Agarwal, "Aging of Multi-stressed Polymeric Insulators : A Bibliographic Survey", IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol. 24, N°. 3, pp. 741-764, 1989.
- [38] P. Cygan, J. R. Laghari, "Models for Insulating Aging under Electrical and Thermal Multi-stress", IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol. 25, N°. 5, pp. 923-934, October 1990.
- [39] IEC 1026 Standard, "Guidelines for Application of Analytical Test Methods for Thermal Endurance Testing of Electrical Insulating Materials", Édition 1991.
- [40] IEC 216, "Guide for the Determination of Thermal Endurance Properties of Electrical Insulating Materials. Part 1: General Guidelines for Aging Procedures and Evaluation of Test Result", 4 <sup>th</sup> Issue, 1991.

- [41] G. C. Montanari, A. Motori, "Thermal Endurance Evaluation of XLPE Insulated Cables", Journal of Physics. D : Appl. Phys; Vol. 24, pp. 1172-1181, October 1991.
- [42] L. Simoni, G. Mazzanti, G. C. Montanari, "Comparison of Long-term Electrical Behaviour of XLPE and EPR Insulated Cables", 91 st Meeting IEEE PES/ICC, pp.1-10, Birmingham, England, July 1992.
- [43] IEC 1858, "Standard Test Procedure for Thermal Evaluation of Electrical Insulation Systems", October 1996.
- [44] C. Mayoux, "Aging of Polymeric Insulating Materials in Power Cables", IEEE, Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 4, N°. 6, pp. 665-673, December 1997.
- [45] A. C. Gjaerrde, "A Phenomenological Aging Model for Combined Thermal and Electrical Stress", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 4, N°. 6, pp. 674-680, December 1997.
- [46] G. C. Montanari, "A Comparative Investigation of Electro-thermal Endurance Models for Insulating Materials and Systems Characterization", IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 13, N°. 3, pp.13-25, May-June 1997.
- [47] G. Mazzanti, G. C. Montanari, L. Simoni, "Insulation Characterization by Accelerated Life Tests. An Application to XLPE and EPR for HV Cables", IEEE Electr. Insul. Magazine, Vol. 13, N°. 6, pp. 24-34, November-December 1997.
- [48] L. Simoni, "A General Phenomenological Life Model for Insulating Materials under Combined Stresses", IEEE Trans. Elect. Insul., Vol. 6, N°. 2, pp. 250-258, 1999.
- [49] M. Reuter, E. Gockenbach, H. Borsi, "Impact of Multi-stress Aging on the Dielectric Relaxation Behaviour of XLPE Cable Insulation", IEEE International Conference on Solid and Dielectrics (ICSD), Vol. 1, pp.339-342, Toulouse, France, July 5-9, 2004.
- [50] J. V. Gulmine, L. Akcelrud, "Correlation between Structure and Accelerated Artificial Ageing of XLPE", European Polymer Journal, Vol. 42, Issue 3, pp. 553-562, March 2006.

# Chapitre 7

# POLYÉTHYLÈNE RÉTICULÉ CHIMIQUEMENT

E présent chapitre est consacré aux matériaux polyoléfines en l'occurrence le polyéthylène et le polyéthylène réticulé chimiquement . Ces derniers présentent une importance considérable pour l'industrie électrique et plus particulièrement dans le domaine d'isolation des câbles de transport d'énergie électrique, vu leurs propriétés intéressantes. Le polyéthylène et le polyéthylène réticulé chimiquement sont devenus des matériaux de choix dans l'isolation des câbles haute tension (HT) de nouvelle génération à cause de leurs performances diélectriques, thermiques, physico-chimiques et mécaniques. Dans ce chapitre, nous présentons les différents procédés chimiques industriels de polymérisation du polyéthylène, sa morphologie ainsi que ses propriétés physico-chimiques. La réticulation thermo-chimique du polyéthylène et les procédés de mise en œuvre des câbles électriques extrudés au PRC sont également exposés.

## I. 1 LES POLYM ÈRES ISOLANTS

Le terme de polymère est très ancien puisque, dès 1866, BERTHELOT mentionnait que « *le styrolène* (le styrène actuel), *chauffé à 200°C pendant quelques heures, se transforme en un polymère résineux* ». N'était-ce pas le premier polymère synthétique reconnu ? C'est probable. Il n'en demeure pas moins que la notion de polymère, dans le sens que nous lui donnons aujourd'hui, a dû attendre l'année 1920, avec les travaux de STAUDINGER (prix Nobel 1953), pour être acceptée et ce n'est qu'au cours de la décennie suivante que la théorie « macromoléculaire» a définitivement triomphé de la théorie «micellaire» à laquelle elle était opposée [1].

Entre-temps, les polymères artificiels et synthétiques avaient conquis leur droit de cité et étaient utilisés comme succédanés de substances rares (celluloïd pour le remplacement de l'ivoire, soie artificielle...) ou comme matériaux présentant des propriétés nouvelles engendrant ainsi de nouvelles applications (bakélite...). La variété des polymères synthétiques découverts par STAUDINGER est impressionnante et nombre de matériaux polymères utilisés couramment de nos jours ont été préparés pour la première fois par ce chercheur. Ses travaux n'ont pas tardé à retenir l'attention des chercheurs de l'industrie chimique et, dès 1933, la firme Imperial Chemical Industries (I.C.I), au Royaume-Uni, obtenait un polyéthylène dont la production mondiale est actuellement de plusieurs dizaines de millions de tonnes par an.

A la fin de la seconde guerre mondiale, les polymères avaient montré leur capacité à se substituer à de nombreux matériaux traditionnels. Des investigations, menées tant dans les laboratoires académiques que dans les centres de recherche industriels, ont aboutit à des améliorations surprenantes de nombreuses propriétés et les polymères ont maintenant pénétré les secteurs les plus avancés de la technologie.

Le terme polymère désigne un système formé par un ensemble de macromolécules, c'est-à-dire d'entités moléculaires de grande dimension, issues de l'assemblage covalent d'un grand nombre d'unités répétitives plus communément appelées unités (ou motifs) monomères. Les édifices macromoléculaires ainsi définis ont des dimensions moléculaires (caractérisées par leur masse molaire) très supérieures à celles des molécules simples ; il en résulte, pour le polymère résultant, des propriétés nouvelles utilisables, en particulier, dans le domaine des matériaux. Le nombre d'unités monomères constitutives d'une chaîne polymère est appelé le degré de polymérisation (DP) ; il est directement proportionnel à la masse molaire du polymère, L'assemblage, au sein d'une chaîne macromoléculaire, d'un petit nombre d'unités monomères, est appelé séquence. Les chaînes constituées d'un petit nombre d'unités monomères sont appelées oligomères ; typiquement, les degrés de polymérisation des

oligomères varient de 2 à quelques dizaines. L'assemblage covalent des unités monomères peut faire intervenir un nombre variable de liaisons ; ce nombre est appelé valence.

Il existe toutes sortes de polymères caractérisés par des propriétés différentes : certains sont utilisés pour leurs propriétés élastiques, thermiques ou encore électriques. Différents polymères existent à l'état naturel, le caoutchouc en est le meilleur exemple. Nous retrouvons des polymères naturels jusque dans les cellules vivantes ! En effet, l'ADN, qui constitue les chromosomes du noyau cellulaire, est lui aussi considéré comme un polymère. La plupart des polymères utilisés de nos jours sont d'origine synthétique (polyéthylène, polyester, polystyrène,...etc.) totalement issus du génie de l'homme par polymérisation de molécules monomères. Leur variété est extrême et ce sont les polyoléfines et plus particulièrement les polyéthylènes qui feront l'objet de notre étude.

Nous désignons par isolant un matériau qui s'oppose à la transmission d'une forme déterminée d'énergie (électrique, thermique, ...). Il existe plusieurs types d'isolants selon la nature du processus physique considéré. Nous pouvons ainsi différencier les isolants relatifs aux principales contraintes rencontrées usuellement, à savoir les contraintes thermique, électrique et mécanique. Comme la plupart des matériaux organiques, les polymères sont en général de bons isolants électriques et thermomécaniques. Ils occupent une place essentielle dans l'isolation des systèmes électriques.

## I. 2 LES POLYÉTHYLÈNES

Les polyéthylènes sont des polymères qui appartiennent à la famille des polyóléfines. Les polyóléfines constituent une des plus grandes familles des matières plastiques. On entend sous cette appellation les polymères dérivés de certains carbures aliphatiques à double liaison [2]. Le polyéthylène est un polymère vinylique et représente la plus grande famille de polymères en terme de volume de production. Le polyéthylène est formé de macromolécules obtenues par polymérisation de l'éthylène  $C_2H_4$  gazeux aussi appelé éthène (figure I.1).



Figure I.1. Molécule d'éthylène.

La molécule se présente sous forme de chaînes contenant 1000 à 2000 monomères. La formule chimique du polyéthylène est [3]:

La polymérisation de l'éthylène par voie radicalaire a été découverte fortuitement par la firme ICI en 1933 qui a réussi à obtenir le premier polyéthylène en opérant à des pressions très élevées (150-300 MPa soit ~ 1500-3000 bars) [4,5]. Le procédé a donné lieu à la production industrielle en 1939 aux Etats-Unis ; il est encore utilisé, la polymérisation étant amorcée à l'aide d'un péroxyde organique ou bien d'oxygène moléculaire, à une température comprise entre 140 et 180°C. Les polymérisations sont effectuées en continu soit dans des réacteurs agités (autoclaves) dont le volume est de l'ordre du mètre cube (m<sup>3</sup>), soit dans des réacteurs tubulaires, moins volumineux (~ 0,4 m<sup>3</sup>), dans lesquels la pression peut être plus élevée que dans les autoclaves. Le polyéthylène radicalaire est donc un des premiers polymères qui a été fabriqué à grande échelle. C'est le polymère le plus important, sa production mondiale annuelle étant voisine de 54 millions de tonnes [1]. La polymérisation nécessite l'ajout de réactifs chimiques appelés aussi catalyseurs ou initiateurs. Ce sont habituellement des péroxydes organiques tels que le péroxyde de benzoyle et le péroxyde bi-tertiaire (notés R sur la figure I.2).



Figure I.2. Polymérisation.

(a) Création de radicaux.

(b) Déplacement du centre actif.

Ces initiateurs, sous l'effet de la température par exemple, se décomposent en deux radicaux. Ces derniers permettent d'ouvrir les doubles liaisons et se placent en tête ou en fin de chaîne. Le centre actif est déplacé en bout de chaîne et la réaction peut ainsi continuer. Après la polymérisation, les molécules d'éthylène sont attachées selon l'axe de leur double liaison pour former une longue chaîne contenant uniquement des liaisons simples entre les atomes de carbone (figure I.3).



Figure I.3. Fraction de polyéthylène.

Le polyéthylène est extrudé avec incorporation éventuelle de quelques additifs de stabilisation thermique de type antioxydant et mis sous forme de granulés utilisables directement dans l'industrie [6].

Partiellement cristallin, le polyéthylène contient deux phases fortement imbriquées l'une dans l'autre [7,8] :

- une zone amorphe hétérogène dans laquelle les chaînes sont disposées de manière désordonnée,
- une zone cristalline dans laquelle les chaînes sont disposées de manière ordonnée formant des cristallites. Les chaînes dans les zones cristallines se regroupent sous forme des lamelles (fibrilles lamellaires) de quelques centaines d'Angström [9]. Ces lamelles sont typiquement arrangées comme des sphérolites [7-9].

Le polyéthylène est constitué par des chaînes macromoléculaires comportant un certain nombre de ramifications latérales, de longueurs variables, disposées au hasard dans le squelette carboné de la molécule [10].

Selon la configuration des chaînes du polymère, le polyéthylène est classifié en deux groupes dont les caractéristiques principales sont énoncées dans le tableau I.1.

	PEbd	PEhd
Structure	ramifiée	linéaire
Aperçu		
Masse volumique	0,915 - 0,935	0,945 - 0,960
Taux de cristallinité	55 % - 70 %	65 % - 80 %
Température de fusion	110 - 120 °C	120 - 135 °C
Température de transition vitreuse	Env - 110 °C	Env - 110 °C
Température maximale de service	70°C	90°C
Indice de réfraction	1,51	1,54
Permittivité à 1 MHz	2,2 - 2,35	2,3 - 2,4
Résistivité (Ω cm )	$10^{15}$ - $10^{18}$	$10^{15}$ - $10^{18}$

Tableau I.1. Principales caractéristiques des polyéthylènes [11].

- Le polyéthylène dit « à haute pression » ou « basse densité » (PEbd) est obtenu par polymérisation sous des pressions de 1000 à 3000 bars et à une température comprise entre 130°C et 400°C. Sa densité est de 0,92 g/cm<sup>3</sup> et son taux de cristallinité de 70 %. Sa température de fusion varie de 105 à 110°C [12,13].
- Le polyéthylène dit « à basse pression » ou « haute densité » (PEhd) est obtenu par polymérisation sous des pressions inférieures à 50 bars et à une température voisine de 110°C. Sa densité est de 0,96 g/cm<sup>3</sup> et son taux de cristallinité de 93 %. Sa température de fusion se situe entre 130 et 145°C [12,14].

Les deux produits ont essentiellement les mêmes caractéristiques en ce qui concerne le poids moléculaire et la structure cristalline [15]. Les procédés de polymérisation et de mise en oeuvre sont variés [2,4,12,16-18]. En raison de leurs structures linéaires faiblement ramifiées, les polyéthylènes basse et haute densité sont thermoplastiques. D'une façon générale, la tenue diélectrique du polyéthylène est accrue par un taux de cristallinité élevé.

A cause de ses très bonnes propriétés électriques (structure non polaire) et mécaniques, le polyéthylène est très utilisé comme isolant dans les câbles de transport d'énergie. L'isolant et les deux couches semi-conductrices du câble sont extrudés au cours de la même opération. Le polyéthylène est porté à l'abri de l'air, à une température voisine de 200°C pour acquérir une fluidité permettant un filtrage des impuretés de taille supérieure à 50  $\mu$ m. La température des différents bains servant au refroidissement de l'isolation est soigneusement contrôlée, afin de minimiser les contraintes mécaniques dans le matériau, et par conséquent la formation de microcavités. La teneur en eau de l'isolant reste inférieure à 10 p.p.m [10].

L'adjonction d'additifs à la résine de base est une méthode possible d'obtention d'échantillons transparents : les molécules de l'additif jouent le rôle de centres de cristallisation, favorisant ainsi la croissance de nombreuses sphérolites de petites dimensions. Ces sphérolites ont été observées dans le polyéthylène par M. Ishida et T. Okamoto [19]. La taille de ces sphérolites est corrélée à la densité du polymère [20]. Pour une densité d<sub>e</sub> ~ 0,95, le diamètre des sphérolites est de l'ordre de 20 à 30 µm. Le polymère est alors totalement opaque puisque la lumière est diffractée par des structures cristallines dont les dimensions sont nettement supérieures à l'ordre de grandeurs des longueurs d'onde du rayonnement du visible. Pour un polyéthylène basse densité (d<sub>e</sub>~ 0,92), la taille des sphérolites peut varier de moins de 1 µm à quelques microns. Ce sont les conditions de transformation du matériau, température et pression de moulage, et surtout le mode de refroidissement qui déterminent les dimensions finales des sphérolites. En refroidissant, des zones cristallines ou cristallites se forment puis s'organisent sous forme de sphérolites [21].

## I. 3. LE POLYÉTHYLÈNE RÉTICULÉ CHIMIQUEMENT

Afin d'améliorer les propriétés thermiques et mécaniques du polyéthylène, on procède à une opération dite de réticulation. Ce procédé industriel, consiste en la modification de la structure du polymère en créant des liaisons pontales « ponts » entre les macromolécules et à les transformer en un réseau tridimensionnel qui permet d'éviter le glissement de toutes les chaînes moléculaires les unes par rapport aux autres [22].

La réticulation du polyéthylène dans l'industrie s'effectue suivant trois procédés [23-26] : la réticulation avec le péroxyde, par irradiation et enfin la réticulation au silane. Les réticulations avec le péroxyde et par irradiation ont été développées en même temps durant les années 1945-1955 [27-30]. En 1970, la réticulation au silane a été introduite par le processus de Sioplas et Monosil : le vinyle au silane est greffé pendant l'extrusion jusqu'à l'obtention d'un polymère avec l'addition d'un catalyseur de condensation [31,32].

Nous nous limitons ici à la présentation de la technique de réticulation avec le péroxyde étant donné que c'est ce procédé qui est utilisé dans la fabrication des câbles en PRC ayant fait l'objet de notre étude. Historiquement, la réticulation du polyéthylène avec un péroxyde a été introduite en 1945 par W. L. Alderson [30]. Ce chercheur a utilisé des péroxydes inorganiques. Durant la même année, P .S. Pinkney et R. H. Wiley ont découvert d'autres péroxydes de types organiques (benzoyl) pour réticuler le PEbd [30]. En 1955, F. M. Precopio et A. R. Gilbert [33] ont mis en oeuvre de nouveaux péroxydes. L'agent de réticulation le plus usuel est le péroxyde de dicumyle (DCP). Ce dernier est un matériau organique semi-cristallin dont l'énergie d'activation de décomposition est de 37 kcal/mole [34] (figure I.4).



Figure I.4. Molécule de péroxyde de dicumyle.

Cependant, il existe d'autres péroxydes organiques tels que le péroxyde t-butyl cumyle ou le péroxyde di-t-butyl (figure I.5). Ces derniers sont parfaitement utilisables en tant qu'agent de réticulation [35]. La concentration du péroxyde dans le matériau joue un rôle très important dans le processus de formation des pontages de réticulation. D'après les travaux de M. Celina et G. A. George [36], la teneur optimale du péroxyde est de 2 % à 3 %. Une augmentation de la quantité du péroxyde au-delà de 3 % n'a pratiquement aucune influence sur la structure du matériau. D'autres travaux effectués par I. Ghasemi et *al.*[37] montrent qu'on peut réduire la quantité du péroxyde en ajoutant au polyéthylène des co-agents de réticulation (méthacrylates par exemple) dans le but d'augmenter le nombre de doubles liaisons sièges des pontages de réticulation.



Figure I.5. Molécules de péroxydes organiques.

Le principe de réticulation est ici décrit à partir du DCP. Néanmoins, il est applicable à tout autre type d'agent de réticulation. Les câbles en polyéthylène réticulé sont fabriqués en extrudant un mélange de polyéthylène basse densité (PEbd) et de DCP (environ 2 % en teneur). Cette opération se fait sous pression et à une température avoisinant les 180°C, sous une vapeur d'eau ou d'azote. Sous l'effet de la température, le DCP se décompose en deux radicaux cumyle (figure I.6).



Figure I.6. Formation de radicaux cumyle.

<sup>(</sup>a) t- butyl cumyle.(b) di- t- butyl.

Ces radicaux sont instables chimiquement, par conséquent, ils vont prendre un atome d'hydrogène de la chaîne polymère pour former une molécule d'alcool cumylique (figure I.7). La chaîne se trouve maintenant avec un atome de carbone insaturé. Le processus de réticulation est ainsi amorcé.



Figure I.7. Formation d'alcool cumylique à partir de radical cumyle.

Lorsque deux chaînes contenant des atomes de carbone, et dont les liaisons ne sont pas saturées, se trouvent assez proches, une liaison est créée entre ces deux atomes. Les chaînes se lient comme cela est indiqué à la figure I.8.



Figure I.8. Processus de réticulation.

Le taux de réticulation est caractérisé par le nombre de pontages qui se substituent aux groupes réactifs (doubles liaisons, atome d'hydrogène allylique,...): il est évalué par des méthodes chimiques ou des essais mécaniques [10].

Chimiquement, le taux de réticulation se mesure à partir de la quantité de matière non soluble dans le xylène bouillant ou le toluène [38], le polyéthylène non réticulé étant soluble.

Le taux de réticulation est donné par la formule :

T (%) = 
$$(1 - \Delta m / m_0) \times 100$$

Où  $\Delta m$  est la masse restante de polyéthylène après le traitement et m<sub>0</sub> la masse de l'échantillon initial.

Une autre méthode physico-chimique appelée Analyse Enthalpique Différentielle permet de mettre en évidence la relation existant entre la température de fusion cristalline du polyéthylène et son taux de réticulation [39].

La méthode mécanique consiste en la mesure de la déformation à chaud sous contrainte « Hot-Set-Test » [40, 41].

Le taux de réticulation est théoriquement proportionnel à la dose de DCP. Cependant, les réactions de réticulation sont complexes et font apparaître des résidus.

### **I.3.1 Réactions secondaires de la réticulation**

Dans cette partie, nous décrivons simplement les réactions secondaires relatives au DCP, étant donné sa large utilisation en milieu industriel. Le principal produit dérivé de la réticulation est bien entendu l'alcool cumylique qui est le résidu attendu (figure I.9) :



Figure I.9. Molécule d'alcool cumylique.

Toutefois, les conditions de fabrication du polyéthylène réticulé font que d'autres résidus sont synthétisés pendant ce processus. En effet, l'alcool cumylique présent dans le matériau se déshydrate à haute température et donne naissance alors à des molécules d'eau et se transforme en  $\alpha$  –méthyl-styrène [42, 43]. Ce résultat a été obtenu par Y. Miyashita et *al*. [44] et I. Ishikawa et *al*. [34]. Les chemins de réaction typiques peuvent être formulés comme le montrent les figures I.10 à I.12, et donnent alors des molécules de :  $\alpha$  –méthyl-styrène, acétophénone, eau, éthane et méthane.

• Formation d'  $\alpha$  –méthyl-styrène et eau :



**Figure I.10.** Molécule d'  $\alpha$  –méthyl-styrène et d'eau.

• Formation d'acétophénone et de radical méthyle :



Figure I.11. Molécule d'acétophénone et de radical de méthyle.

• Formation d'éthane et de méthane à partir du radical méthyle :

 $2 \text{ CH}^{\circ}_{3} \longrightarrow C_2 \text{ H}_{6}$ 



Figure I.12. Molécules d'éthane et de méthane.

Tous ces produits résidus de la réticulation sont plus ou moins volatiles. Ainsi, la présence d'eau, de méthane et d'éthane est négligeable (< 0,001 %). L'existence d'  $\alpha$  –méthyl-styrène n'est pas conséquente mais non négligeable ( $\approx$  0,02 %). En revanche, l'alcool cumylique et l'acétophénone sont bien plus présents (> 0,5 %). Leur concentration respective varie en fonction des conditions de la mise en forme du PRC, notamment au niveau de la température et de la dose de DCP [45].

La présence des produits de décomposition en particulier l'alcool cumylique dans le polyéthylène réticulé avec un péroxyde, peut influencer fortement l'apparition des microcavités remplies d'eau. Il a été montré expérimentalement par F. Ciuprina et *al.* [46] que la présence de l'acétophénone dans le polyéthylène réticulé chimiquement joue le rôle d'inhibiteur d'arborescences d'eau et améliore la résistance du matériau aux arborescences électriques. Des travaux entrepris dans différents laboratoires de recherche sur l'influence des produits de décomposition sur la formation et la distribution de la charge d'espace [42,47-52], ont abouti à l'hypothèse que la charge d'espace est fortement influencée par la présence de produits de décomposition. Ces derniers jouent un rôle de piégeage et contribuent ainsi à la formation et à la distribution d'une densité très importante de l'hétéro-charge à l'interface entre l'isolant et les électrodes.

### I.3.2. L'antioxydant et ses produits de décomposition

Compte tenu des conditions de fabrication des polyéthylènes (température, oxygène, humidité,...etc), l'oxydation du matériau est inévitable. Pour contrer ce processus, les fabricants introduisent des composés antioxydants (Voir tableau I.2).

Tableau I.2. Structures moléculaires d'antioxydants classiques.



L'ajout d'antioxydant (AO) se fait pendant la phase d'extrusion. En effet, lorsque le polymère est mis à chaud et entre en contact avec l'air ambiant, les conditions d'oxydation du polymère sont favorisées grâce à l'action combinée de la température et de l'oxygène. L'antioxydant présent à ce moment-là permet de fixer la majeure partie de l'oxygène, et ainsi de prévenir la dégradation par oxydation du polymère. En présence d'antioxydant et après un vieillissement thermique, le taux de carbonyles reste constant à la périphérie du matériau. A l'inverse, dans les mêmes conditions, un matériau dépourvu d'antioxydant présente un taux de carbonyles sept fois plus élevé près de la surface [53].

Il existe plusieurs types d'antioxydants dont les principales structures, données dans le tableau I.2, sont de type phénolique, amine et sulfure. Bien évidemment, ces différentes compositions vont entraîner des variations de proportion des produits dérivés issus de la réticulation [54]. Par ailleurs, l'antioxydant engendre lui aussi des produits dérivés. En effet, il s'oxyde à la place de la matière à protéger. De là naissent de nouveaux composés de nature complexe.

### I.3.3. Morphologie du polyéthylène réticulé chimiquement

Dans une étude effectuée sur des tronçons de câbles [55], des chercheurs ont pu observer en microscopie électronique à balayage, une morphologie sphérolitique. La mise en œuvre des câbles s'opérait suivant le procédé de réticulation Stream Curing Process et la taille des sphérolites s'étendait de 40 à 10  $\mu$ m, de l'intérieur vers l'extérieur suivant le rayon de l'isolation [55]. Ceci est en relation avec le fait que, au cours du refroidissement, un gradient de température s'établit de telle sorte que la couche externe se refroidit plus rapidement et donne lieu à des sphérolites plus petits [56]. Certains auteurs ont, par ailleurs, pu mettre en évidence la présence de micro-cavités de quelques microns de diamètre, formée par la vapeur d'eau, au centre même des sphérolites.

J. Muccigrosso et P. J. Philips [57] ont mis au point une technique permettant l'étude de la morphologie de l'isolation des câbles en PRC, technique qui associe le polissage et le décapage de la surface du matériau par jet de tétrachlorure de carbone, à l'observation par microscopie électronique à balayage. La morphologie s'avère être typiquement celle du polyéthylène non réticulé, c'est-à-dire une morphologie de sphérolites imbriquées les unes dans les autres. Comme dans un polymère réticulé idéal, toutes les molécules doivent faire partie intégrante du réseau, et donc être insolubles, le matériau qui a été éliminé sur le pourtour des sphérolites ne peut être attribué qu'à deux types de substances solubles : les produits de décomposition aromatiques du péroxyde, et les molécules de la partie non

réticulée du polymère, de faible poids moléculaire, rejetés durant la cristallisation. L'observation révèle la présence de cavités de diamètre compris entre 5 et 10  $\mu$ m aux points de rencontre de trois sphérolites ou plus. Ce résultat a d'ailleurs été confirmé par d'autres auteurs [58], qui ont utilisé la microscopie optique à transmission. Il est admis que, dans le PRC, ces cavités sont le résultat de la pénétration de vapeur d'eau dans l'isolant, lors du processus de réticulation, par condensation sous forme de gouttelettes après refroidissement.

Le dernier point d'observation des auteurs [58] concerne le pourtour du sphérolite où apparaissent des cavités de taille inférieure aux précédentes (1micron de diamètre), dont l'origine n'est pas l'absorption d'eau, mais plutôt la présence de contaminants organiques solubles tels les produits de décomposition de l'initiateur. Etant donné la relation qui existe entre la morphologie sphérolitique du produit et la localisation de ces deux types de cavités, il est évident que les conditions de cristallisation employées lors de la mise en œuvre jouent un grand rôle quant à la taille et au nombre des sphérolites et par conséquent des cavités.

En résumé, la morphologie du PRC observée par cette technique rappelle celle du polyéthylène, c'est-à-dire un ensemble de sphérolites, mais au sein desquels existe un dispositif de cavités et microcavités dues respectivement à l'absorption d'eau et la contamination du péroxyde lors du processus de mise en œuvre.

### I.3.4. Procédés de fabrication des câbles isolés au PRC

Jusqu'à la fin des années 1970, le seul procédé utilisé industriellement était la réticulation par voie chimique en présence de péroxyde et sous pression de vapeur d'eau. Depuis le début des années 1980 sont apparus de nouveaux procédés dont certains s'affranchissent du péroxyde [22].

### I.3.4.1. Réticulation à la vapeur d'eau

La ligne à vulcanisation continue utilisée pour la mise en œuvre des câbles isolés au PRC est constituée de l'association d'une extrudeuse suivie d'une ligne tubulaire divisée en deux sections ; l'une, correspondant à la zone de chauffage où la mise en température du matériau est obtenue en utilisant de la vapeur d'eau sous pression (10 à 15 kg/cm<sup>2</sup>), la deuxième étant la zone de refroidissement par l'eau également sous pression [55]. Ce procédé, le plus fréquemment mis en œuvre industriellement, est appelé Steam Curing Process (S.C.P) dans la littérature anglo-saxonne. Pendant la réaction de réticulation, des produits de décomposition gazeux sont libérés, donnant lieu à des microcavités dont le nombre est de l'ordre de  $10^6/mm^3$  et la taille varie de 1 à 20 µm, ce qui laisse introduire de l'eau en quantité notable dans

l'isolant (jusqu'à 200 ppm en masse) [59]. Afin d'empêcher qu'il ne se forme des occlusions dans l'isolation, il est nécessaire de maintenir une haute pression de vapeur sur tout le cycle de réticulation.

#### I.3.4.2. Réticulation en gaz inerte chauffé

Le principe est le même que précédemment, seulement la vapeur d'eau est remplacée par un gaz inerte, l'azote porté à 300°C sous une pression de 10 kg/cm<sup>2</sup>. Ce procédé permet d'atteindre des températures de réticulation plus élevées que dans le procédé S.C.P. Néanmoins, cette méthode présente un inconvénient, car l'énergie thermique entre le gaz et la surface du câble s'avère moins bonne que lorsqu'on utilise la vapeur. Il faut réduire les phénomènes de convection thermique en utilisant un flux de gaz. Certains auteurs montrent [55] que le transfert de chaleur, de la surface à la couche interne du câble, dépend de l'épaisseur de l'isolant et de la vitesse du fluide. Ce procédé permet de réticuler une épaisseur importante d'isolant presque aussi rapidement que dans le cas où l'on utilise la vapeur d'eau, si l'on dispose d'une vitesse de gaz convenable. L'utilisation du chauffage par gaz sous pression élimine le risque d'inclusion d'humidité dans l'isolant et du fait que le gaz est porté à haute pression, le nombre et la grosseur des vacuoles diminuent sensiblement, ce qui est très important pour les câbles MT et HT.

#### I.3.4.3. Réticulation par radiation

Le procédé, désigné sous les termes de «Radiant Curing Process (R.C.P)», utilise un chauffage par infrarouge d'un gaz inerte ( $N_2$  ou SF<sub>6</sub>) sous pression, de sorte que la réticulation se produise à une température voisine de 300°C, alors que dans le procédé S.C.P, la température que l'on atteint pour scinder le péroxyde dépend de la pression de la vapeur et se trouve limitée à 200°C environ par la tenue mécanique du tube de réticulation. Le refroidissement s'opère ici par l'eau à une pression égale à celle du gaz inerte. Les vitesses de réticulation du procédé sont supérieures à celles du procédé S.C.P [60]. L'avantage de ce procédé réside d'une part dans l'absence de vapeur qui a pour conséquence une diminution importante du taux d'humidité et des microcavités (vacuoles) dans l'isolation ; d'autre part, le chauffage et la pressurisation étant indépendants, la température et la pression peuvent être réglées séparément.

### I.3.4.4. Réticulation aux ultrasons

L'idée de base de la méthode est de réduire le temps de réticulation en utilisant un chauffage par mise en vibration du milieu. Elle met à profit les propriétés viscoélastiques du

polyéthylène conduisant, comme dans la plupart des polymères, à la production de chaleur lorsque ce matériau est soumis à des vibrations dynamiques telles que les ondes sonores ou ultrasonores. On utilise l'eau comme milieu d'irradiation de sorte que l'onde sonore est transmise en quasi-totalité. Les fréquences utilisées sont comprises entre 400 et 500 kHz. Cependant si l'on ne met en œuvre que les ultrasons comme moyen de chauffage, la température est plus importante près du conducteur et la réticulation se trouve plus complète au centre ; c'est pourquoi, pour la partie extérieure du câble, on est conduit à adjoindre un chauffage classique par vapeur d'eau. Les avantages de ce procédé sont doubles : d'une part la longueur du tube de réticulation peut être réduite de moitié, d'autre part la vitesse de production peut être augmentée d'un facteur de 1,5 par rapport au procédé S.C.P. Dans ce procédé, la taille des cavités est comprise entre 1 et 15  $\mu$ m [55].

### I.3.4.5. Procédé de réticulation SIOPLAS

La technique de réticulation au silane est la plus récente des méthodes utilisées. Elle a été introduite par Dow Corning à la fin des années soixante [61], en utilisant des organofonctionnels silanes non saturés (généralement vinyltrimethoxysilane). C'est uniquement en 1970 que cette technologie a été utilisée dans la fabrication des câbles. Ce procédé se distingue totalement des précédents car il ne fait pas intervenir la décomposition d'un péroxyde. Ici, une première réaction chimique a pour effet de greffer des groupes polyfonctionnels du type organosilanes (dérivé organique du silicium) sur la chaîne du polyéthylène. Dans une deuxième réaction, les pontages sont établis après condensation de groupes alkoxy. La caractéristique de ce procédé est telle qu'après la première étape, l'isolation est toujours thermoplastique et peut être extrudée sur un conducteur. L'extrusion sur le conducteur est réalisée à partir d'une ligne classique alimentée par le mélange suivant: d'une part des granulés de polyéthylène greffés, du silicone et de l'initiateur de greffage, d'autre part des granulés formés par le mélange de polyéthylène, d'antioxydant et d'un catalyseur. Les pontages entre chaînes de polyéthylène se font lors d'une opération ultérieure. Le câble est mis sur le touret après extrusion et stocké dans un lieu humide à la pression atmosphérique ou immergé dans l'eau chaude à environ 90°C. La durée de réticulation dépend de l'épaisseur de l'isolant; elle est de 1 à 4 heures pour les câbles B.T [22]. La réticulation en une seule étape (procédure MONOSIL) est comparable à la précédente, mais les réactions de greffage et de pontage sont faites en une seule phase à chaud. La teneur en humidité dans l'isolant (20 à 200 ppm en masse) est inférieure à celle obtenue par la réticulation par les péroxydes en phase vapeur car la réticulation par les silanes s'effectue à une température inférieure à 100°C où l'eau est moins soluble dans le polyéthylène. Le polyéthylène réticulé au silane est dénommé PRS.

## I.3.5 Avantages du PRC sur le PE

Dans l'optique des usages électriques, le PE est apprécié pour sa légèreté, sa stabilité chimique, sa bonne résistance à l'ozone, sa flexibilité, son absence de fragilité aux basses températures et ses grandes qualités diélectriques dans la gamme des matières plastiques connues. Néanmoins, il est à noter quelques points faibles :

- 1. Une température de ramollissement pâteux suivie de fusion, relativement basse, ce qui lui confère une mauvaise tenue en cas de court-circuit du câble à isoler.
- 2. Sous l'effet d'une contrainte mécanique, une tendance à fluer lentement et d'autant plus que la température s'élève, pour s'écouler franchement au dessus de 120°C.
- 3. Une médiocre résistance à l'action de l'oxygène de l'air, au vieillissement thermique et aux rayons UV. Ces inconvénients sont toutefois efficacement atténués par l'incorporation d'antioxydants et de noirs de carbone.
- 4. L'aptitude à se fissurer au contact de certaines matières organiques telles que les liquides détergents.

La réticulation du Polyéthylène a pour conséquence les principaux avantages suivants :

- La réticulation confère au PEbd des propriétés mécaniques améliorées et en particulier une meilleure résistance au fluage (déformation à chaud). Celles-ci peuvent également être améliorées par l'incorporation de charges renforçantes au polymère. Le produit obtenu est un thermoplastique. Sa tenue au vieillissement thermique est améliorée par rapport à celle du PEbd [6].
- 2. La réticulation fait disparaître complètement la tendance qu'avait la résine à se fissurer au contact d'atmosphères agressives du type oxydant.
- 3. Le PRC possède une meilleure résistance à la fissuration sous l'effet de contraintes mécaniques extérieures.
- 4. Du fait de la réticulation, la température d'utilisation à la corde est de 90°C et la température tolérée en court-circuit est de 250°C [6].
- 5. Le PRC chargé de noirs de carbone appropriés ne propage la flamme que difficilement.
- Les propriétés thermiques et électriques du PRC ne sont pas très différentes de celles du PE. Il semblerait même qu'un PRC résiste mieux à la propagation des arborescences électriques qu'un PE [6].

Les principaux avantages du PRC sur le PE sont résumés dans le tableau I.3.

Tableau I.3. Principaux avantages du PRC sur le PE [62].

	PEbd	PRC
Structure	ramifiée	réticulée
Densité	0,91 - 0,93	0,91 - 0,93
Taux de cristallinité	55 % - 70 %	55 % - 70 %
Température de fusion	110 - 120°C	120 - 135 °C
Température de transition vitreuse	Env -110°C	Env -110°C
Température max de service	70°C 90°C	
Température tolérée en surcharge	90°C	130°C
Température tolérée en court- circuit	150°C	250°C
Permittivité à 1 MHz	2,2 - 2,4	2,2 - 2,4
Résistivité (Ω cm)	> 10 <sup>16</sup>	> 10 <sup>16</sup>
Résistance à la traction (kg/mm <sup>2</sup> )	1,5 - 2,0	1,8 - 3,0
Allongement à la rupture (%)	300 - 700	300 - 700
Rigidité diélectrique (kV/mm)	30 - 50	30 - 50
Facteur de dissipation diélectrique	< 0,0005	< 0,0005
#### I.3.6. Inconvénients du PRC

Bien que la rigidité diélectrique de la résine de base soit supérieure à 800 kV/mm, la rigidité diélectrique pratique liée aux conditions de fabrication a limité le champ moyen des câbles d'énergie à 4 kV/mm. Les principaux défauts responsables des valeurs relativement basses de la rigidité sont classées en deux catégories : ceux qui conduisent à accroître le champ électrique dans des régions ponctuelles de l'isolation, et ceux qui conduisent à une faiblesse diélectrique locale. Parmi les premiers, on peut citer les défauts tels que des protubérances des écrans semi-conducteurs et des inclusions conductrices dans l'isolant. Parmi les deuxièmes, des inclusions ionisables, gazeuses ou liquides, créées principalement par une mauvaise dispersion des agents de réticulations dans le PE et par une exécution incorrecte des opérations d'extrusion et de réticulation.

On a pu constater en effet que la morphologie de l'isolation en PRC comportait des cavités ayant pour origine la pénétration d'eau et la présence de produits de décomposition du péroxyde, de telle sorte que, au sein du matériau existe un réseau de défauts. A titre documentaire, nous reproduisons les données de B. Yoda et K. Muraki [58], qui ont remarqué une distribution radiale du nombre de cavités dans le cas de l'isolation PRC d'un câble dont la tension de service est de 154 kV. L'observation des cavités est faite au microscope sur des échantillons de 0,2 mm d'épaisseur. La taille de ces défauts est comprise entre 3 et 4  $\mu$ m. On constate que le nombre maximum de cavités est situé aux trois quarts de l'épaisseur de l'isolation en partant du conducteur.

Les divers procédés de fabrication décrits plus haut (§ 1.3.4) ont plus ou moins de propension à créer des microcavités dans l'isolation des câbles. Le cas le plus défavorable est celui du procédé S.C.P où l'on utilise de la vapeur d'eau comme moyen de chauffage et de l'eau pour le refroidissement. La taille de ces cavités varie de 1 à 20  $\mu$ m, leur nombre étant de l'ordre de 10<sup>6</sup> par m<sup>3</sup> [59]. Le procédé de réticulation en gaz inerte chauffé est celui où le nombre de défauts semble être le moins important. Néanmoins on estime [59] qu'ils ne peuvent complètement disparaître, même par un dégazage des granulés d'origine, et le minimum observé pour ces cavités reste de l'ordre de 10<sup>4</sup> par m<sup>3</sup>. La méthode R.C.P, où la quantité d'eau en présence provient essentiellement du refroidissement par l'eau, produit aussi un nombre de microcavités inférieur à celui qu'entraîne le procédé S.C. P. Leur taille est voisine du micron mais quelques unes dépassent 5 microns. A titre de comparaison, S. Nagazaki et *al.* [60] donnent le pourcentage en poids d'eau contenue dans l'isolation pour les procédé S.C.P et R.C.P : les valeurs obtenues sont respectivement de 0,204 % et 0,031 %. Enfin dans le procédé par l'utrasons, la taille des cavités est comprise entre 1 et 5  $\mu$ m.

Le polyéthylène réticulé chimiquement connaît actuellement un grand développement, et devant l'importance croissante de l'utilisation du PRC en tant qu'isolation d'une nouvelle génération de câbles et compte tenu de la présence de défauts, facteur décidant de la tenue de l'isolant, il est très important que le mélange polymère-antioxydant-péroxyde utilisé soit le plus pur possible et que les conditions technologiques de réalisation du câble, extrusion et refroidissement, soient bien définies et contrôlées de manière à éviter la formation de vacuoles et de fissures qui pourraient nuire à la qualité du câble.

# **BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE 1**

- [1] M. Fontanille, Y. Gnanou, "Chimie et physico-chimie des polymères", 2<sup>ème</sup> et 3<sup>ème</sup> cycles École d'Ingénieurs, Édition Dunod, Paris 2002.
- [2] J. Bost, "Matières plastiques, chimie et applications", Tome I, Deuxième édition, Technique et Documentation, Lavoisier, 1992.
- [3] A. Vonhippel, "Les diélectriques et leur applications", traduit par M. Sausade, Édition Dunod, Paris, 1961.
- [4] J. P. Mercier, E. Maréchal, "Chimie des polymères, synthèses, réactions, dégradations", Traité des matériaux, tome N°. 13, Presses Polytechniques et Universitaires Romandes, 1996.
- [5] A. Smedberg, B. Gustafsson, T. Hjertberg, "What is Cross-linked Polyethylene", IEEE International Conference on Solid Dielectrics, Vol. 1, pp. 415-418, Toulouse, France, July 5 -7, 2004.
- [6] N. Demay et J. C. Bobo, "Câbles haute tension à isolation au polyéthylène. Matériaux pour câbles haute tension à isolation polyéthylène ou polyéthylène réticulé chimiquement", RGE, Tome. 85, N°. 9, pp. 731-736, septembre 1976.
- [7] A. Barlow, "The Chemistry of Polyethylene Insulation", IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 7, N°. 1, pp. 8-19, 1991.
- [8] L. Boudou, J. Gaustavino, "Influence of Temperature on Low Density Polyethylene Films through Conduction Measurements", Journal of physics D : Vol. 35, pp. 1555-1561, 2002.
- [9] U. H. Nilsson, R. C. Dammert, A. Campus, A. Sneck, H. J. Jannsson, "Morphology of Polyethylene for Power Cable Insulation : Effects of Antioxidant and Crosslinking", IEEE International Conference on Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics, pp. 365-367, Vasteras, Sweden, 1998.
- [10] R. Fournié, "Les isolants en électrotechnique : Essais, Mécanismes de dégradation, Applications industrielles", Éditions Eyrolles, 1990.

- [11] WWW. Polymères, "Base de données des polymères", Groupe Dedienne .
- [12] H. K. Kausch, N. Heymans, C. J. Plummer, P. Decroly, "Matériaux polymères: propriétés mécaniques et physiques, principes de mise en oeuvre", Traité des Matériaux, tome N°. 14, Presses Polytechniques et Universitaires Romandes, 2001.
- [13] D. C. Miles, "Technologie des polymères", Édition Dunod, paris, 1968.
- [14] S. O. Han, D. W. Lee, O. H. Han, "Thermal Degradation of Cross-linked High Density Polyethylene", Polymer Degradation and Stability, Vol. 63, pp. 237-243, 1999.
- [15] S. Pelissou, "Propriétés diélectriques du polyéthylène à température élevée", Thèse de Doctorat, Varennes, 1986.
- [16] J. Dorlot, J. Baïlon, J. Masounave, "Des matériaux", Éditions de l'École Polytechnique de Montréal, 1991.
- [17] J. Scheirs, "Polyethylene (Stabilization and Compounding)", The Polymeric Materials Encyclopaedia, CRC Press, INC, 1996.
- [18] J. Scheirs, G. Evens, "Polyethylene (High Density Preparation)", The Polymeric Materials Encyclopedia, CRC Press, INC, 1996.
- [19] M. Ishida, T. Okamoto, "Direct Observation of XLPE Morphology through the FE-STEM Method", Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, pp. 757-762, 1993
- [20] C. Laurent, "Contribution à l'étude des mécanismes de la rupture à long terme des polymères", Thèse d'Etat ès Sciences Physique, Université Paul Sabatier de Toulouse, 1984.
- [21] H. Wagner, "Seudo-spherulite Structure in Cross-linked Low-density Polyethylene", IEEE Trans. on Elect. Insul., Vol. 13, N°. 2, pp. 81-86, April 1978.
- [22] M. Pays, "Câble de transport d'énergie Technologie et Caractéristiques", Techniques de l'ingénieur D 4520, 1996.
- [23] B. Gustafsson, J. O. Boström, R. C. Dammert, "Stabilization of Peroxide Cross-linked Polyethylene", Die Angewandte Makromolekulare Chemie 261 / 262, pp. 93–99, 1999.

- [24] J. V. Gulmine, L. Akcelrud, "Correlations between the Processing Variables and Morphology of Cross-linked Polyethylene", Journal of Applied Polymer Science, Vol. 94, pp. 222-230, 2004.
- [25] S. Dadbin, M. Frounchi, M. Haji Saeid, F. Gangi, "Molecular Structure and Physical Properties of E-Beam Cross-linked Low Density Polyethylene for Wire and Cable Insulation Applications", Journal of Applied Polymer Science, Vol. 86, pp. 1959-1969, 2002.
- [26] B. Meola, L. Nele, L. Giorleo, "Technological Characterisation of Thermo-shrinking Cross-linked Polyethylene by Destructive and Non Destructive Techniques", Journal of Materials Processing Technology, Vol. 133, pp. 353-358, 2003.
- [27] P. S. Pinkney, R. H. Wiley, DU. Pont, "Curing of Polyethylene", U.S. Patent, 1945.
- [28] R. E. Kent, DU. Pont, "Process for Extruding and Insolubilizing Polymers of Ethylene", U.S. Patent, 1948.
- [29] A. Holmstrom, "On the Thermal and Thermo-oxidative Degradation of Polyethylene", Thèse de Doctorat, Chalmers University of Technology, Gothenburg, Sweden, 1973.
- [30] B. Sultan, "Cross-linking of a Polyolefin", The Polymeric Materials Encyclopedia, CRC Press. Inc., 1996.
- [31] H. G. Scatt, "Cross-linking of Polyolefin with a Silane", U.S. Patent, 1968.
- [32] P. Green, W. J. Maillefer, "Manufacture of Extruded Products", U.S. Patent, 1974.
- [33] F. M. Precopio, A. R. Gilbert, U.S. Patent, 3, 79, 370, 1955.
- [34] J. V. Gulmine, L. Akcelrud, "Correlation between Structure and Accelerated Artificial Ageing of XLPE", European Polymer Journal, Vol. 42, Issue 3, pp. 553-562, March 2006.
- [35] I. Ishikawa, S. Nakamura, S. Utsunomiya, S. Yamamoto, T. Niwa, "The Research of Peroxide Decomposition in XLPE Cables", IEEE Annual Report of the Conference on Electrical Insulation and Dielectric phenomena (CEIDP), Tokyo, Japan, pp. 506-511, 1994.

- [36] M. Celina, G. A. George, "Characterisation and Degradation Studies of Peroxide and Silane Cross-linked Polyethylene", Polymer Degradation and Stability, Vol. 48, pp. 297-312, 1995.
- [37] I. Ghasemi, J. Morshedian, "The Effect of Co-agent on the Peroxide Cross-linking of LDPE", Iranian Polymer Journal, Vol. 12, N°. 2, pp. 119-125, 2003.
- [38] ASTM Standards, "Test Methods for Determination of Gel Content and Swell Ration of Cross-linked Ethylene Plastics", Annual Book of ASTM Standards, D 2765, 1992.
- [39] C. Caillot, C. Audoux, H. Auclair, "Application de l'analyse enthalpique différentielle à l'étude du polyéthylène haute pression pour câbles", RGE Tome. 81, N°. 11, Novembre 1972.
- [40] CEI 811.2.1, "Hot Set Test", First Edition 1986.
- [41] IEC "Test Method for Measurement of Hot Creep of Polymeric Insulation" Insulated Cable Engineers Association, INC; Publication IEC AT 28-5-5672, 1983.
- [42] N. Hirai, R. Minami, T. Tanaka, Y. Ohki, "Chemical Group in Cross-linking by Products Responsible for Charge Trapping in Polyethylene", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 10, N°. 2, pp. 320-330, April 2003.
- [43] M. Saure, W. D. Schuppe, H. Andress, "Méthodes analytiques et physiques sensibles pour diagnostiquer les modifications de l'état dans des plaques ou des isolations de câbles en poly-oléfines", CIGRE, Rapport 15-03, pp. 1-10, 1988.
- [44] Y. Miyashita, H. Kato, "Cross-linking Reaction of LDPE and the Behaviour of Composition Products from Cross-linking Agents", IEEE Proceeding of the 21<sup>st</sup> Symposium on Electrical Insulating Materials, pp. 259-262, 1988.
- [45] H. Kato, Y. Miyashita, "Elucidation of the Chemical Reaction in the Cross-linked Polyethylene Insulation Exposed to High Temperature", Mitsubishi Cable Industries Ltd., pp. 391-400.
- [46] F. Ciuprina, G. Teissèdre, J. C. Filippini, "Polyethylene Cross-linking and Water Treeing", Polymer, Vol. 42, pp. 7841-7846, 2001.

- [47] Y. Sekii, T. Kogure, T. Maeno, "Influence of Physical Properties and Peroxide Decomposition Products on the Space Charge Formation in XLPE and EPDM", IEEE Proceeding of the 5<sup>th</sup> International Conference on Properties and Applications of Dielectric Materials, pp. 132-136, Seoul, Korea, May 25-30 1997.
- [48] G. Perego, F. Peruzzotti, G. C. Montanari, F. Palmieri, G. De Robertis, "Investigating the Effect of Additives for High-Voltage Polymeric DC Cables through Space Charge Measurements on Cables and Films", IEEE Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, pp. 456-459, 2001.
- [49] N. Nibbio, T. Uozumi, N. Yasuda, T. Fukui, "The Effect of Additives on Space Charge in XLPE Insulation – Cross-linking Reagent and Antioxidant -", IEEE Conference Record of the International Symposium on Electrical Insulation, pp. 559-562, Pittsburgh June 5 – 8 1994.
- [50] N. Hirai, Y. Maeno, T. Tanaka, Y. Ohki, "Roles of Cumyl Alcohol and Cross-linked Structure in Homo-charge Trapping in Cross-linked Polyethylene", IEEE Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, pp. 213-216, 2003.
- [51] G. Tardieu, G. Teyssedre, C. Laurent, "Role of Additives as Recombination Centres in Polyethylene Materials as Probed by Luminescence Techniques", Journal of Physics D: Applied Physics, Vol. 35, pp. 40-47, 2002.
- [52] G. Teyssedre, C. Laurent, A. Aslaides, N. Quirke, L. A. Diassado, G. C. Montanari, A. Compus, L. Martinotto, "Deep Trapping Centres in Cross-linked Polyethylene Investigated by Molecular Meddling and Luminescence Techniques", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 8, N°. 5, pp. 744-752, 2001.
- [53] F. Oldervoll, "Polymer Materials as Insulation in HVDC Cables", Rapport d'activité du Department of Electrical Power Engineering, (http:// www. Elkraft. ntnu. no).
- [54] Y. Sekii, Y. idei, K. Asakawa, "Influence of Antioxidants on Polyethylene Chemical Cross-linking Reaction", Annual report of CEIDP, pp. 469-472, 2001.
- [55] G. Garcia, "Sur le comportement du polyéthylène réticulé chimiquement soumis à l'action des décharges partielles", Thèse de Doctorat de spécialité de 3<sup>ème</sup> cycle, Université Paul Sabatier Toulouse, 1980.

- [56] H. L. Miller, "The structure of Polymers", Reinhold Publishing Corporation, Chap. 10, 1966.
- [57] J. Muccigrosso, P. J. Philipps, "The Morphology of Cross-linked Polyethylene Insulation", IEEE Trans. on Elect. Insul., Vol. EI 13, N°. 3, pp. 172-178, 1978
- [58] B. Yoda, K. Muraki, "Development of EHV Cross-Linked Polyethylene Insulated Power Cables", IEEE Transactions on Power Apparatus and Systems, Vol. PAS 92, N°. 2, pp. 506- 513, 1973.
- [59] S. Kageyama, M. Ono, S. Chabata, "Microvoids in Cross-linked Polyethylene Insulated Cables", IEEE Trans. on Power Apparatus and Systems, Vol. PAS 94, N°. 4, July-August, pp. 1258-1263, 1975.
- [60] S. Nagasaki, H. Miyauchi, O. Yoneyama, K. Sanko, "Underground Tansmission and Distribution Conference", 1974.
- [61] Y. Zhu, H. G. Yoon, Y. S. Suh, "Electrical Properties of Silane Cross-linked Polyethylene in Comparison with DCP Cross-linked Polyethylene" IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 6, N°. 2, pp. 164-168, April 1999.
- [62] Japanese Industrial Standard, YKAZAKI XLPE Power Cables, Technical Manual, November 1978.

# Chapitre 11

# VIEILLISSEMENT THERMIQUE DES MATÉRIAUX POLYMÈRES

**C** E chapitre est consacré au vieillissement des matériaux polymères et à la méthodologie d'essai et de prévision des durées de vie dans les conditions d'utilisation. On peut appeler vieillissement toute altération lente et irréversible (dans les conditions d'utilisation), d'une ou plusieurs propriétés du matériau considéré [1,2]. Cette évolution peut résulter de modifications de la structure des macromolécules qui assurent sa cohésion mécanique, de sa composition chimique ou de sa morphologie. Le vieillissement pose bien entendu des problèmes lorsqu'il se traduit par une altération des propriétés fonctionnelles comme l'aspect, la résistance mécanique, ou des propriétés plus spécifiques de l'utilisation (isolation électrique, perméabilité gazeuse ou liquide,...etc). Le phénomène de vieillissement des matériaux polymères et ses répercussions sur la fiabilité des systèmes d'isolation, en l'occurrence les câbles électriques ont fait et continuent de faire l'objet de nombreuses investigations [3-17].

# **II.1 ASPECTS THÉORIQUES DU VIEILLISSEMENT**

Dans le domaine du vieillissement, trois questions récurrentes se posent toujours :

- pourquoi le matériau polymère exposé aux conditions de service et de l'environnement est- il défaillant, c'est - à - dire pourquoi ses propriétés d'usage se dégradent-elles avec le temps ?
- Comment peut-on espérer le stabiliser pour augmenter sa durée de vie ?
- Quelle est la durée pendant laquelle le matériau pourra être utilisé, quelle sera sa durabilité ?

On peut représenter le matériau polymère exposé à l'environnement et aux conditions de service par un système sur lequel sont appliquées de multiples contraintes, diélectriques, mécaniques, thermiques,...etc. L'évolution des propriétés est le résultat d'une modification de la structure chimique des macromolécules. Cette modification présente plusieurs aspects : soit une fonctionnalisation des macromolécules, soit un changement de fonctionnalité soit des coupures du squelette, soit enfin des réticulations. C'est l'ensemble de ces modifications qui provoque à terme la dégradation des propriétés macroscopiques.

Les études qui ont été faites de manière rationnelle plutôt qu'empirique montrent qu'il existe une conjugaison entre les différents facteurs, et finalement le vieillissement apparaît comme une compétition entre différents processus, électriques, thermiques, photochimiques,...etc. Il est alors nécessaire d'identifier les évènements chimiques qui interviennent sur les chaînes macromoléculaires et qui sont responsables de la dégradation des propriétés [18].

La dégradation des polymères correspond à une limitation importante de la variété de leurs applications et la notion de durabilité a dû être introduite pour adapter au mieux les caractéristiques du matériau polymère à celles requises pour ses applications.

Dans le domaine de l'isolation électrique, la contrainte thermique constitue une contrainte sévère de service pouvant affecter sérieusement les propriétés du matériau polymère en les dégradant et réduisant ainsi la durée de vie des câbles électriques. On traitera ici le vieillissement thermique des polymères ainsi que les mécanismes conduisant à leur dégradation.

### **II.2 VIEILLISSEMNT THERMIQUE**

On appelle vieillissement thermique toute altération lente et irréversible des propriétés d'un matériau, résultant de son instabilité propre ou d'effet de l'environnement et qui ne fait intervenir que le matériau, l'atmosphère et la température [19]. Le vieillissement thermique est caractérisé par des mécanismes complexes faisant intervenir des phénomènes purement

physiques (migration de plastifiants, évolution de la morphologie, dégazage) ou des phénomènes chimiques parmi lesquels l'oxydation par l'oxygène atmosphérique, qui joue souvent un rôle prépondérant [20,21].

## **II.2.1 Vieillissement physique**

Le terme vieillissement physique englobe tous les processus conduisant à une altération irréversible des propriétés du matériau sans qu'il y ait modification de la structure chimique des macromolécules et autres constituants du matériau [19,22, 23]. Le vieillissement physique peut résulter :

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

On distingue deux grandes catégories de phénomènes selon qu'ils impliquent ou non un transfert de masse, c'est-à-dire un transport de petites molécules du matériau vers l'environnement (perte d'adjuvants) ou de l'environnement vers le matériau (absorption de solvants).

#### II.2.1.1 Vieillissement physique par transfert de masse

Les phénomènes de transfert de masse font essentiellement appel aux notions de solubilité, de diffusion et de plastification. Le transfert peut s'opérer dans les deux sens comme il est illustré à la figure II.1.





Le nombre de petites molécules susceptibles de s'installer dans le réseau macromoléculaire, c'est -à- dire leur solubilité dans le polymère, dépend du nombre de sites (accessibles) portés par les macromolécules, capables d'établir des interactions avec elles et donc les retenir. Ces interactions sont essentiellement déterminées par la polarité électrique des groupes en présence. C'est pourquoi les polymères peu polaires (PE, PRC) ont peu ou pas d'affinités avec la majorité des solvants. Les phénomènes de transfert de masse peuvent être appréhendés quantitativement dans le domaine de la pratique par des mesures gravimétriques (figure II.2).





L'intérêt des méthodes gravimétriques réside dans leur simplicité et leur précision élevée (précision relative : couramment  $10^{-4}$ ). D'autres méthodes, en particulier spectrométriques et chromatographiques, peuvent alors être mises en œuvre.

#### i) Pénétration de solvants

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

- Le solvant n'induit pas de modification de la structure du polymère : sa concentration tend vers une limite correspondant à la saturation (limite de la solubilité), qui dépend, dans le cas d'un environnement gazeux, de la pression partielle du solvant dans l'atmosphère.

- Le solvant induit une modification de la structure du polymère ou de sa morphologie (fissuration liée à un gonflement différentiel) : dans ce cas, on peut observer une variation continue de la concentration en solvant.

La pénétration du solvant dans un polymère est influencée par les facteurs suivants :

• la structure chimique du motif structural élémentaire :

C'est elle qui détermine essentiellement l'affinité du polymère pour le solvant considéré. A la limite, le solvant peut dissoudre totalement le polymère (s'il est linéaire). Des considérations de thermodynamique permettent de prévoir l'affinité d'un polymère pour un solvant d'après le coefficient d'interaction polymère solvant  $X_{SP}$  [22] :

$$X_{SP} = V_S (\delta_S - \delta_P)^2 / RT + X_c \qquad (FLORY-HUGGINS) \qquad (II.1)$$

Où

V<sub>S</sub> : volume molaire du solvant

R : constante des gaz parfaits

T : température absolue

 $\delta_{S}$  : paramètre de solubilité du solvant

 $\delta_P$  : paramètre de solubilité du polymère

X<sub>c</sub> : terme de correction entropique (négligeable si les interactions polymère solvant sont faibles).

L'affinité est d'autant plus faible que  $X_{SP}$  est fort. A titre indicatif, le paramètre de solubilité de l'eau ( $\delta_S$ ) est de 23,2 (cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/2</sup> et celui du polyéthylène ( $\delta_P$ ) est de 7,9 (cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/2</sup> [25].

• <u>la morphologie</u> :

Les zones cristallines peuvent être considérées comme imperméables. La solubilité globale décroît donc avec le taux de cristallinité. Dans les polymères amorphes, l'état de gélification, qui détermine la compacité du réseau macromoléculaire, joue également un rôle important.

• <u>le taux de réticulation :</u>

La pénétration de solvants est d'autant plus aisée que le taux de réticulation est faible, sauf si la réticulation fait apparaître de nouveaux groupes fonctionnels ayant une affinité élevée pour le solvant. Notons que dans les réseaux tridimensionnels (PRC), ce sont les zones les moins réticulées qui constituent les sites d'accueil plus ou moins favorables pour un éventuel diffusant. Autrement dit, la distribution de ce dernier au sein du réseau sera hétérogène, ce qui peut influencer le comportement à long terme. La pénétration du solvant a pour conséquence la plastification qui se traduit par une modification du comportement mécanique du matériau à savoir la diminution du module d'élasticité et de la contrainte à la rupture ainsi qu'une augmentation de l'allongement à la rupture. Une autre conséquence de la plastification est la diminution de la température de transition vitreuse  $T_v$ ; en effet dans le cas de l'eau, on estime que 1 % d'eau diminue la  $T_v$  de l'ordre de 10 à 20°C (ramollissement du polymère en déplaçant sa  $T_v$  vers le bas) [24].

#### ii) Perte d'adjuvants

La perte d'adjuvants résulte de la migration de ces derniers hors des matériaux. Dans tous les cas, le départ de l'adjuvant se traduit par la perte des propriétés qu'il était censé apporter au polymère. La migration d'adjuvants se produit par les surfaces, la quantité est proportionnelle au volume et par conséquent, la vitesse moyenne de diminution de la concentration en adjuvant est une fonction décroissante de l'épaisseur [22]. En d'autres termes, le cœur de l'échantillon sert de réservoir alimentant les zones superficielles en adjuvant. Dans le cas où l'adjuvant est un stabilisant, la diffusion n'est pas nécessairement un inconvénient, elle peut devenir un avantage, car le stabilisant est consommé par la réaction dans les zones superficielles, mais le cœur alimente en continu celles-ci jusqu'à la disparition de la totalité du stabilisant initialement présent dans le matériau. Dans le cas d'un stabilisant non diffusant, la consommation sera totale dans les zones superficielles qui se trouveront à terme non protégées et pourront se dégrader fortement, alors que la majeure partie du stabilisant restera inutilisée dans les zones internes. Les praticiens ont, depuis longtemps, remarqué que certains stabilisants, en particulier anti-UltraViolet (UV), dont l'efficacité devrait, en fait, dépendre peu de la matrice, ont des performances beaucoup plus spectaculaires dans les polyoléfines (PE, PRC) que dans des polymères plus polaires (par exemple PVC). Ce phénomène peut être expliqué, au moins en partie, par le fait que, peu solubles dans les matrices hydrocarbonées, ces stabilisants ont une nette tendance à exsuder hors de ces polymères, ce qui n'est pas le cas pour les matrices polaires. On peut distinguer trois mécanismes principaux :

#### <u>l'évaporation</u>

C'est le cas le plus fréquemment rencontré dans les applications électriques (isolation des câbles). Les molécules du plastifiant se trouvant à la surface peuvent donc passer dans l'atmosphère, d'où l'existence d'un gradient de concentration dans l'épaisseur du matériau. L'apparition de ce gradient entraîne la diffusion du plastifiant du cœur vers la surface. Le mécanisme entraîne la disparition progressive du plastifiant. Lorsque les adjuvants sont de petites molécules, ils sont susceptibles de s'évaporer et de migrer rapidement hors du polymère. La capacité d'évaporation du plastifiant est intimement liée au poids moléculaire de ce dernier [26].

La solubilité des adjuvants dans les polymères constitue un facteur important. En effet, les anti-oxygènes (anti-oxydants) sont entièrement solubles dans le polyéthylène à l'état liquide (fondu), mais leur limite de solubilité à l'état solide, est nettement inférieure à 0,2 %, il y a donc séparation de phase, l'excès d'anti-oxygène exsude à la surface du matériau où il s'évapore.

La masse molaire de l'adjuvant joue également un rôle majeur dans le phénomène de l'évaporation. La vitesse de migration et d'évaporation augmente lorsque la masse molaire diminue. La vitesse de perte de plastifiant dépend essentiellement de l'épaisseur du matériau (la vitesse est inversement proportionnelle à l'épaisseur), de la température (la vitesse augmente quand la température augmente), du confinement de l'atmosphèr*e* (la vitesse augmente quand le confinement diminue), et de la structure du plastifiant.

Le problème de migration et d'évaporation des adjuvants se pose essentiellement pour les polyoléfines (faible solubilité) dont fait partie le polyéthylène réticulé chimiquement, et pour les polymères mis en œuvre à température élevée. Le phénomène d'évaporation se manifeste dans la dégradation des polymères utilisés dans l'isolation des câbles et se traduit par une perte de masse [22,27,28] et une chute brutale et considérable des propriétés mécaniques du matériau polymère [29-32].

• <u>L'extraction</u>

Les phénomènes d'extraction sont à prendre en compte dans le cas de contact entre un polymère et un milieu liquide. Ici, c'est la stabilité de l'adjuvant dans le liquide qui est susceptible de jouer le rôle le plus important et qui sera en tous cas le premier paramètre à prendre en compte lors du choix du matériau [19,33].

#### • <u>L'exsudation</u>

L'exsudation n'est autre que le résultat d'une évolution vers l'équilibre. Dans certains cas, le mélange (polymère + adjuvant) peut être déstabilisé par un corps tiers provenant de l'environnement [19, 33].

Les effets les plus importants de la migration des adjuvants se situent au plan mécanique. Ils sont à l'opposé de ceux observés en cas de pénétration de solvants et se traduisent dans le cas de plastifiants par [22] :

- une augmentation du module d'élasticité (Young) et des contraintes au seuil et à la rupture ;

- diminution de l'allongement à la rupture ;

- augmentation de la température de transition vitreuse.

Dans le cas de stabilisants, c'est la stabilité chimique qui diminuera. Dans de nombreux cas, la stabilité globale est gouvernée par la résistance à la migration des adjuvants.

Les propriétés de surface : aspect, résistance électrique superficielle, adhésivité, pourront être modifiées par une exsudation du plastifiant : ce dernier migre vers la surface mais, peu volatil, forme un film liquide sur celle-ci [22]. Les isolants de câbles électriques, souples à l'origine, se rigidifient avec le temps en allant jusqu'à la fissuration suite à la perte de plastifiants.

#### II.2.1.2 Vieillissement physique sans transfert de masse

#### i) Fissuration sous contrainte en milieu tensioactif

En milieu tensioactif, les polymères et plus particulièrement le polyéthylène sont le siège de fissurations dans les zones les plus contraintes et cela après un temps pouvant varier entre quelques minutes et quelques jours, selon les conditions et la qualité des polymères. Le phénomène de fissuration est lié au développement de forces de tension superficielles à l'interface polymère-liquide. Il dépend de plusieurs paramètres à savoir la contrainte mécanique (la durée de vie augmente lorsque la contrainte diminue), la température et la tensio-activité du liquide dont la viscosité détermine la vitesse de pénétration dans les fissures. Aux paramètres externes, s'ajoutent les paramètres internes ; nous pouvons citer la structure du polymère, la distribution des masses moléculaires et la morphologie du polymère (distribution de tailles de cristallites et sphérolites) [22].

#### ii) Vieillissement physique interne (évolution de la morphologie)

Le vieillissement physique interne est uniquement lié à des causes internes au matériau (mobilité moléculaire), c'est-à-dire au fait que le matériau est, au terme de sa mise en œuvre, dans un état thermodynamiquement instable. Le vieillissement résulte alors d'une évolution plus ou moins lente vers un état plus stable. Le vieillissement physique est donc lié à la

mobilité moléculaire, on peut prévoir qu'il sera d'autant plus rapide que la température est élevée, et d'autant plus faible que l'histoire thermique en fin de mise en œuvre aura permis au matériau d'atteindre l'état de stabilité (refroidissements lents). Le vieillissent physique se traduit par une augmentation de la compacité du réseau macromoléculaire, autrement dit par une réduction du volume spécifique qui peut être expliquée par le concept du volume libre (volume disponible par les mouvements de segments de macromolécules). Il est un phénomène auto-ralenti puisque la vitesse d'évolution est liée à la mobilité moléculaire, ellemême liée au volume libre qui diminue au cours du temps. Le vieillissement physique affecte toutes les propriétés dépendant du volume libre et la mobilité moléculaire. La masse volumique augmente, le coefficient de dilatation diminue, le facteur de pertes diélectriques diminue [22,34]. Le vieillissement physique se traduit par le développement d'un pic endothermique, dans la zone de la transition vitreuse, sur le thermogramme obtenu par analyse enthalpique différentielle (AED). L'évolution de l'aire de ce pic donne une image de l'histoire de l'échantillon. On considère généralement qu'il s'agit d'un pic de relaxation des contraintes internes induites par le vieillissement (la réticulation peut avoir le même effet). Certains auteurs [22] en donnent cependant une interprétation purement thermodynamique. Le matériau perd de l'énergie au cours de son vieillissement physique et récupère l'énergie perdue dès qu'il est chauffé au-dessus de sa transition vitreuse.

#### iii) Chocs thermiques (variations de température)

Les chocs thermiques peuvent entraîner des ruptures mécaniques induites par dilatation différentielle. Lorsque la température du milieu varie rapidement, un gradient de température s'instaure dans l'épaisseur du matériau d'où dilatation différentielle de la zone superficielle - zone interne. Dans le cas d'un choc thermique de grande amplitude, une seule excursion en température peut entraîner la rupture. Dans le cas de cycles de plus faible amplitude, la dégradation peut intervenir à terme, le matériau étant sollicité en fatigue.

#### **II.2.2 Vieillissement chimique**

On appelle vieillissement chimique tout phénomène impliquant une modification chimique du matériau (polymère ou ses adjuvants) sous l'influence de l'environnement. Dans la pratique, le vieillissement chimique se superpose souvent à un vieillissement physique et les deux phénomènes s'interfèrent [22]. Les principaux types de réactions intervenant lors du vieillissement chimique sont les suivants :

- Coupure de chaînes statistiques ;
- Dépolymérisation ;
- Réticulation ;
- Oxydation.

#### i) Coupure de chaînes statistiques

Les coupures de chaînes statistiques se produisent sur des sites distribués de manière aléatoire dans le réseau macromoléculaire. Une grande variété de mécanismes chimiques peut être la cause de coupure statistique des chaînes. On peut citer la thermolyse, coupure  $\beta$ , l'hydrolyse, et la radiolyse [33]. Les coupures de chaînes peuvent être schématisées de la manière suivante (figure II.3) :



(b) Polymère tridimensionnel

#### Figure II.3. Coupures de chaînes statistiques

Il est généralement admis que la dégradation d'un polymère commence toujours par une rupture de liaison (scission primaire). Cette coupure résulte d'un apport d'énergie (chimique, mécaniques, photo- ou radiochimique, thermique) à la macromolécule ; lorsque cette énergie est concentrée sur une liaison et qu'elle est supérieure à l'énergie de liaison, la rupture est effective. Dans la majorité des cas, la position, dans la chaîne, de la liaison rompue, est aléatoire ; il peut cependant en être différemment comme, par exemple, avec la dégradation thermique qui succède à la rupture d'une première liaison dans une chaîne [35, 36]. Le mécanisme de coupure de chaînes statistiques dans les polymères fait intervenir la notion de stabilité thermique. En effet, il existe une corrélation entre l'énergie de dissociation des liaisons et la stabilité thermique des polymères (la stabilité étant déterminée par la liaison la plus faible). L'énergie de la liaison la plus faible détermine donc dans une large mesure la stabilité globale qui peut être exprimée par la température de demie vie  $T_{1/2}$  ou mieux, la température de début de dégradation déterminée selon un critère conventionnel.

Les coupures de chaînes statistiques conduisent à des macrofragments non volatils dans le cas du polyéthylène. Sur le plan de la structure, ces coupures de chaînes provoquent une diminution de la longueur moyenne des chaînes donc une diminution de la masse moléculaire moyenne dans le cas des polymères linéaires, et une diminution du taux de réticulation (densité en ponts du réseau) et donc une augmentation de la masse moléculaire critique moyenne dans le cas des polymères tridimensionnels (PRC). Les propriétés physiques telles que les propriétés optiques, élastiques et thermiques sont très peu affectées par les coupures de chaînes statistiques. Cependant, les coupures de chaînes affectent considérablement les propriétés mécaniques car elles sont responsables de fragilisation du matériau [22].

#### ii) Dépolymérisation

La dépolymérisation est un cas particulier de la réaction de coupure de chaînes. Une coupure de chaîne crée un site actif qui déstabilise la liaison monomère voisine et entraîne l'élimination séquentielle de molécules de monomère. La dépolymérisation est donc l'inverse de la polymérisation, elle est d'autant plus facile que l'énergie de liaison monomère-monomère est faible [22]. La dépolymérisation peut être schématisée comme suit (figure II.4) :

$$-A-A-A-A^{\circ} \longrightarrow -A-A-A^{\circ} + A$$
  
soit  $-(A)_{n} - A^{\circ} \longrightarrow -(A)_{n-1} - A^{\circ} + A$   
 $-(A)_{n-1} - A^{\circ} \longrightarrow -(A)_{n-2} - A^{\circ} + A$   
etc

Figure II.4. Schéma de dépolymérisation des polymères.

La dépolymérisation intervient de façon plus ou moins importante dans les divers types de dégradation. Les phénomènes mis en jeu et les relations qui les régissent présentent une très grande analogie avec ceux relatifs aux polymérisations. Plusieurs réactions interviennent dans le mécanisme de dépolymérisation ; nous les énumérons selon leur ordre de déroulement : amorçage, dépropagation, transfert et terminaison [37-42]. Quelques grandeurs caractéristiques de la dégradation thermique du polyéthylène rapportées par H. Sawada [42] et S. Stivala [43] sont données dans le tableau II.1 :

Polymère	Monomère (%)	Volatilisation (% mn <sup>-1</sup> )	T <sub>d</sub> (° C)	T <sub>1/2</sub> (°C)
	(a)	(b)	(c)	(d)
Dolyáthylóno	0.03	0.004	400	415
Polyethylene	0,05	0,004	400	413

Tableau II.1. Grandeurs caractéristiques de la dégradation thermique du polyéthylène.

(a) pourcentage en masse de monomère formé lors de la dépolymérisation thermique à 300 - 350°C dans le vide ; (b) vitesse de volatilisation du polymère à 350°C (% mn<sup>-1</sup>) ; (c) température de décomposition ; (d) température de demie vie T<sub>1/2</sub> (le polymère perd 50% de son poids en 30 minutes).

La température de demie vie est donnée par la relation empirique suivante [35] :

$$T_{1/2} = 1,6 E + 140$$
 (II.2)

Où E est la valeur de l'énergie de rupture, en kJ.mol<sup>-1</sup>, pour la scission primaire.

Un acte de dépolymérisation conduit à l'élimination d'un fragment moléculaire (monomère) et à une diminution très faible et rapide de la masse moléculaire. Les coupures de chaînes statistiques conduisent donc à une diminution rapide de masse moléculaire sans élimination de fragments volatils, et les dépolymérisations ont, à vitesse de réaction égale, les effets inverses. Notons que les deux processus peuvent coexister dans le cas du vieillissement thermochimique.

#### iii) Réticulation

La réticulation est la réaction conduisant à la formation de ponts covalents entre les segments de chaînes voisines. La réticulation du polyéthylène s'accompagne, le plus souvent, par la génération de radicaux libres dans la masse du polymère. Ceux-ci peuvent induire la formation de radicaux sur la chaîne par arrachement d'hydrogène ou par addition sur des instaurations résiduelles et conduire au pontage par recombinaison inter-macromoléculaire. le polymères linéaires Dans cas des de taux de réticulation modérés (schématisés par le premier stade de la réaction sur la figure II.5.a), la réticulation se traduit par l'apparition de chaînes plus ramifiées et de masse moléculaire plus élevée que les chaînes initiales. Le polymère perd partiellement sa solubilité dans les polymères de taux de réticulation élevés (schématisés par le second stade de la réaction sur la figure II.5.b).



(b) Polymère tridimensionnel.

Figure II.5. Réticulation.

Dans le cas des polymères tridimensionnels, la réticulation se traduit par une augmentation de la concentration en nœuds de réseau (diminution de la masse moyenne). Elle s'accompagne d'une diminution du taux de gonflement et une augmentation de la température de transition vitreuse  $T_v$  et du module d'élasticité [22]. Les propriétés physiques du matériau sont peu affectées à part la solubilité qui diminue. Au plan des propriétés mécaniques, la réticulation conduit à une augmentation du module d'élasticité (figure II.6), de la contrainte à la rupture et de la température de ramollissement.



Figure II.6. Module d'élasticité du polyéthylène [22].

Dans le cas de polymères initialement linéaires, une réticulation modérée peut également conduire à une augmentation de l'allongement à la rupture. Dans le cas réel de vieillissement, la réticulation est pratiquement toujours accompagnée de coupures de chaînes. En effet, le polyéthylène (PE) et de nombreux polymères tridimensionnels (en l'occurrence le PRC), peuvent subir simultanément des coupures de chaînes et une réticulation dans le cas du vieillissement thermique. Leurs propriétés évoluent alors en fonction de la part prise par chacun des processus [22]. La caractérisation du processus de réticulation dans le cas des polymères tridimensionnels se fait en mesurant leur taux de réticulation ou les grandeurs physiques qui leur sont liées ( $T_v$ ).

#### iv) Oxydation

Les matériaux polymères sont, bien entendu, le plus souvent utilisés dans notre milieu naturel qui est le milieu atmosphérique, ils sont donc en contact avec l'oxygène. Leur caractère organique et la nature des agressions qu'ils subissent, photo ou radiochimique, thermique, font par ailleurs qu'ils soient le siège de processus radicalaires (faisant intervenir des radicaux libres). Or, les radicaux libres ont la propriété de réagir très rapidement avec l'oxygène, d'où l'importance des processus d'oxydation dans le vieillissement. L'oxydation est une réaction en chaîne amorcée par la rupture d'une liaison en radicaux libres. Elle se traduit par l'accumulation de groupes tels que -OH et >C=O. Bien que l'oxydation thermique concerne de nombreux polymères, le cas des polyoléfines dont fait partie le PRC est particulièrement important. L'oxydation directe par l'oxygène est un processus radicalaire en chaîne qui, en plus des étapes classiques (amorçage, propagation,... etc), en comprend d'autres qui lui sont particulières : étape de conversion des radicaux radicalaires qui est consommatrice d'oxygène et correspond à une stabilisation, cette étape est dite de branchement. Les étapes (réactions) gouvernant le mécanisme d'oxydation sont données par le modèle standard (figure II.7) suivant [22,35] :

• Amorçage :

Agression Polymère  $\longrightarrow$  R° (radicaux) RH + O<sub>2</sub>  $\longrightarrow$  R° + HO<sub>2</sub>° • Conversion des radicaux : R° + O<sub>2</sub>  $\longrightarrow$  RO<sub>2</sub>°



Figure II.7. Modèle standard du mécanisme d'oxydation des polymères.

La diffusion de l'oxygène dépend de la structure du polymère ; elle est d'autant plus facile que celle-ci est moins organisée. Dans les structures purement cristallines, l'oxygène ne diffuse pas ; cela explique que la vitesse de dégradation oxydante est plus élevée dans les zones amorphes que dans les zones semi-cristallines. La vitesse d'oxydation du polyéthylène est inversement proportionnelle à son degré de cristallinité [36]. La structure du polymère influence directement la chaîne principale d'oxydation et en particulier la réaction de propagation par arrachement d'hydrogène qui en est l'étape la plus lente et qui gouverne donc, pour une large part, la vitesse globale du processus. L'oxydabilité d'un polymère, quel que soit le mode d'amorçage, dépend donc au premier plan de l'arrachabilité des hydrogènes qu'il comporte. De nombreuses études ont permis de préciser les relations entre la structure et ce facteur, et de montrer qu'il existe une relation directe entre l'énergie de liaison entre le polymère et l'hydrogène, et la vitesse d'arrachement. Le mécanisme de la thermo-oxydation du polyéthylène est régi par les réactions suivantes (figure II.8) [33] :



Figure II.8. Réactions de thermo-oxydation du polyéthylène.

La dégradation thermo-oxydante du PE et du PRC est largement dominée par des coupures de chaînes et la formation de groupes polaires tels que : cétones, aldéhyde, alcool et acides. Les coupures de chaînes entraînent la diminution de la viscosité du polymère et les groupes polaires favorisent la mobilité des porteurs de charges. L'oxydation a pour effet d'introduire des dipôles électriques dans les macromolécules provoquant ainsi une augmentation du facteur de pertes diélectriques et une diminution de la rigidité diélectrique du matériau polymère. D'autres conséquences peuvent être induites lors du processus d'oxydation des polymères ; nous pouvons citer l'apparition de bandes d'absorption diélectriques (augmentation de pertes) et l'abaissement du seuil de température au-delà duquel la dégradation démarre [22].

La cinétique d'oxydation est fréquemment caractérisée par la présence d'un temps d'induction pendant lequel les propriétés évoluent peu. Ce temps d'induction augmente avec les performances du système d'antioxydant [23]. La détection de l'oxydation s'effectue par des essais physico-chimiques telle que la spectrométrie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF), qui permet d'identifier dans le PE et le PRC les groupes carbonyles (acides, cétones, aldéhydes, alcool) [44]. La stabilité à l'oxydation des matériaux polymères est évaluée par le temps d'induction de l'oxydation (OIT) [45]. L'exposition du PRC à des températures élevées conduit à la consommation de l'antioxydant, ce qui conduit à l'anticipation du temps de commencement de l'oxydation.

# **II.3. ENDURANCE THERMIQUE DES MATÉRIAUX POLYMÈRES**

# II .3.1. Généralités

L'endurance thermique de matériaux isolants électriques, c'est-à-dire leur comportement lors d'une exposition prolongée à température élevée a toujours été le centre d'intérêt des chercheurs dans le domaine de l'isolation électrique [14,46-58]. En effet, une classification des matériaux en classe de température fut établie en vue de connaître leur tenue thermique. Vers 1974, de nouvelles règles ont été établies sous l'égide de la Commission Electrotechnique Internationale (CEI) pour la détermination expérimentale de l'endurance thermique en remplacement de l'ancienne classification. Les méthodes d'essai d'endurance thermique ont été développées et publiées dans les normes CEI 216 [59], CEI 611 [60] et CEI 1026 [61].

La détermination de l'endurance thermique des matériaux repose sur des essais. Néanmoins, l'expérience acquise en service a été prise en compte lors de l'établissement des principales règles. Définir l'endurance thermique d'un matériau signifie décrire l'évolution de son comportement à long terme sous l'action de la température. La description de l'endurance thermique d'un matériau est normalement effectuée par l'établissement de réseaux de courbes donnant la variation de propriétés en fonction du temps et pour différentes températures. On en déduit des courbes de durée de vie, c'est-à-dire les relations qui lient la durée de vie à la température. On peut enfin tirer de cette dernière, en général moyennant une extrapolation, la durée de vie correspondant à une température donnée, ou réciproquement, définir une température maximale d'utilisation comparable avec une durée de vie préalablement fixée.

L'avantage des méthodes d'essais d'endurance thermique réside dans la facilité d'examiner n'importe qu'elle propriété importante en service, dans des conditions de températures, des durées et d'environnement choisies pour les essais d'endurance, qui représentent de façon pratique les conditions de service. Cependant, les essais conventionnels de vieillissement thermique présentent deux points faibles : leur incapacité à évaluer les mécanismes de base – modifications élémentaires se produisant à l'échelle moléculaire – responsables du vieillissement observé et les temps importants nécessaires à l'obtention des résultats.

La complexité du vieillissement et certaines des limitations des essais conventionnels d'endurance ont conduit à utiliser des techniques analytiques complémentaires basées sur des essais physico-chimiques pour faciliter les investigations. Celles-ci ont été développées et publiées aux sessions de 1982 et de 1988 de la CIGRE [52,62]. Une autre méthode reposant

sur un principe dit processus de vieillissement égalisé « Equalised Ageing Process » est également utilisée pour l'étude de l'endurance thermique [63].

#### II.3.2. Principe de la détermination de l'endurance thermique des isolants

La caractéristique du vieillissement ou la stabilité à long terme des isolants solides doit permettre de répondre à l'une des questions simples suivantes:

- Pendant quel temps t, peut-on maintenir un matériau isolant sous une contrainte C<sub>0</sub>?

- Si l'on désire une durée de maintien ou durée de vie donnée t<sub>0</sub>, quelle contrainte maximale sera autorisée?

Pour y répondre, il suffit de connaître la relation contrainte-temps C=f (t) (figure II.9) [64]. La contrainte peut être la température, la tension ou le champ électrique. Dans la présente étude, la contrainte est la température.



Figure II.9. Variation du temps de vieillissement en fonction de la contrainte appliquée.

Pratiquement, l'établissement de cette relation passe assez souvent par la détermination d'une relation de type de celle présentée à la figure II.10 qui décrit les variations d'une propriété du matériau en fonction du temps de vieillissement et ce pour diverses valeurs  $C_1$ ,  $C_2$ ,... $C_n$  de la contrainte appliquée C. Si l'on se fixe une valeur de la propriété  $P_0$ , choisie en fonction des critères d'emploi, on obtient la relation C (t) relative à la valeur de la propriété  $P_0$ . Il s'agit de ce qu'on a coutume d'appeler courbe de durée de vie ou d'endurance thermique. La propriété peut être une propriété électrique (rigidité diélectrique, par exemple) ou une propriété mécanique (résistance à la traction, par exemple).

Les travaux relatifs à l'endurance thermique des matériaux isolants solides ont pour objet la mise au point de méthodes générales de détermination de leur stabilité. Le but de ces essais est de simplifier les résultats et de les exploiter sous formes d'indices de températures attribués aux matériaux pour leurs propriétés mécaniques d'une part et pour leurs propriétés électriques d'autre part [47].

En ce qui concerne les essais, on soumet les matériaux à l'action prolongée de la chaleur puis on détermine l'évolution d'une ou plusieurs de leurs propriétés en fonction du temps de vieillissement, ce qui permet de tracer les caractéristiques P = f(t) (figure II.10). Le choix d'une valeur limite de la propriété  $P_0$  permet de déterminer les temps pour lesquels cette limite est atteinte ou durée de vie et ceci pour plusieurs températures de vieillissement. En répétant les essais, on peut tracer la courbe d'endurance thermique t = f(T) (figure II.11) [65].



Figure II.10. Variation de la propriété P en fonction du temps de vieillissement pour différentes valeurs de C.

Généralement, on s'intéresse à l'indice de température qui est, par définition, le nombre égal à la température exprimée en degrés Celsius qui correspond, sur le graphique d'endurance thermique, à un temps donné normalement égal à 20000 heures [55]. Certains chercheurs font des essais très accélérés (Very Acelerated Thermal Ageing) qui se font en un temps de 500 heures au lieu de 5000 heures soit une division par 10 [64].



Figure II.11. Graphique d'endurance thermique.

Variation du logarithme de la durée de vie des polymères en fonction de l'inverse de la température.

# II.3.3. Choix des températures de vieillissement

La CEI 216 [59] fixe un minimum de trois températures différant chacune de la plus voisine de 20°C tel que le critère de dégradation soit atteint :

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

# II.4. DURÉE DE VIE ET FIABILITÉ DES SYSTÈMES D'ISOLATION

La durée de vie est le temps nécessaire pour qu'une propriété techniquement importante atteigne une valeur limite tel que le matériel puisse encore fonctionner de façon satisfaisante [52]. La fiabilité d'un système ou d'un composant est la probabilité conditionnelle à un âge donné de remplir sa fonction, à l'intérieur des limites de performances spécifiées pour la période de temps et sous des contraintes aux conditions de fonctionnement [66]. Pour ces deux notions, de nombreux modèles ont été établis et développés.

# II.4.1. Modèles de durée de vie

En service, les matériaux isolants ou les systèmes d'isolation en l'occurrence les câbles d'énergie électrique sont sujets à de nombreuses contraintes : électrique, thermique, mécanique, environnementales...etc., qui conduisent à leur vieillissement à long terme. Le vieillissement des câbles est généralement favorisé par les facteurs des processus de leur mise en œuvre (présence de défauts suite au type de processus choisi). De ce fait, la prise en considération de ces contraintes et de ces facteurs de vieillissement dans l'élaboration des modèles de durée de vie s'avèrent nécessaire.

# II.4.2. Cas d'une seule contrainte

On considère que le câble est soumis seulement au champ électrique ou à la contrainte thermique (température).

#### II.4.2.1. Modèle de puissance inverse

Le modèle de puissance inverse est, en général, le modèle le plus fréquemment utilisé dans les études de vieillissement électrique des isolants solides. Ce modèle est un modèle empirique introduit par Peek en 1929 [67]. Il est donné par la relation suivante [68]:

$$t = kE^{-n} \tag{II.3}$$

Où

$$\log t = \log k - n \log E$$

Avec:

t: durée de vie

E: champ électrique appliqué

k: paramètre à déterminer à partir des essais

n: coefficient d'endurance électrique à déterminer expérimentalement.

Afin de vérifier la validité de l'application du modèle, il faut tracer la courbe donnant E en fonction de t en coordonnées bilogarithmiques. Si la courbe est une droite, le modèle peut

être appliqué [68]. Des difficultés se présentent lors de l'extrapolation des résultats à des champs électriques très faibles. En effet, l'extrapolation de la droite de durée de vie conduit à conclure que l'isolant claquera au bout d'un certain temps à champ nul. Pour tenir compte du champ seuil, une autre forme de modèle de puissance inverse est donnée par [7]:

$$t = t_s \left[\frac{E}{E_s}\right]^{-n} \tag{II.4}$$

Où: t: durée de vie E: champ électrique appliqué  $E_s$ : champ électrique seuil  $t_s$ : durée de vie lorsque  $E = E_s$ n: coefficient d'endurance en tension.

Une meilleure approximation est obtenue pour les faibles valeurs du champ électrique mais la relation donne une durée de vie infinie quand la valeur du champ est nulle, ce qui est en contradiction avec les données expérimentales. Ce modèle est valable pour  $E \ge E_s$ . Le coefficient n constitue un critère d'évaluation de l'endurance en tension du matériau: plus sa valeur est élevée, meilleur est l'isolant [69]. Ce coefficient est compris entre 4 et 20 [70].

#### II.4.2.2. Modèle exponentiel

Dans le cas du modèle exponentiel, la relation entre le champ électrique appliqué et la durée de vie est donnée par [68]:

 $t = C \exp(-kE) \tag{II.5}$ 

Où

Avec:

t: durée de vie E: champ électrique appliqué C et k: constantes à déterminer expérimentalement.

Pour valider le modèle, il faut représenter la courbe donnant E en fonction de t en coordonnées semi-logarithmiques (axe des ordonnées en échelle logarithmique). Si cette courbe est une droite, l'hypothèse d'utilisation du modèle est correcte [71]. En tenant compte du champ seuil, une autre forme de ce modèle est donnée par [51]:

$$t = \frac{K_2}{E - E_s} \exp\left[-K_1(E - E_s)\right]$$
(II.6)

Avec: t: durée de vie E: champ électrique appliqué E<sub>s</sub>: champ électrique de seuil K<sub>1</sub>, K<sub>2</sub>: constantes à déterminer expérimentalement.

Une meilleure approximation est obtenue quand le champ électrique appliqué est voisin du champ seuil. Ce modèle est valable dans le cas où  $E > E_s$  [51]. Aux champs électriques faibles ( $E < E_s$ ), la contrainte thermique est responsable de la rupture diélectrique [14].

#### II.4.2.3. Modèle d'Arrhenius

En 1913, C. P. Steinmetz et B. G. Lamme publient une étude sur le vieillissement des isolations électriques. A partir de 1921, Montsinger pratique des essais de vieillissement sur des échantillons de papier imprégné d'huile minérale qui le conduisent à formuler en 1930 une loi empirique exprimant la réduction de leur durée de vie pour un accroissement de 8°C de la température [72]. En 1948, T.W. Dakin formule une expression de la durée de vie des isolants soumis à la contrainte thermique qui est fondée sur la cinétique des réactions chimiques représentant les phénomènes élémentaires prédominants de la dégradation. La vitesse de la température de vieillissement T. L'expression de cette vitesse a été établie par Arrhenius, elle est donnée par la relation suivante [19] :

$$V = V_0 \exp(-E/KT) \tag{II.7}$$

Avec:

E: énergie d'activation du phénomène, en J/mole.

K: constante de Boltzmann des gaz parfaits (8,314 J/mole K).

V<sub>0</sub>: constante.

T: température absolue, en K.

La durée de vie t d'un matériau isolant solide en fonction de la température de vieillissement selon le modèle d'Arrhenius est donnée par [69] :

$$t = A \exp \frac{B}{T}$$

$$Lnt = LnA + \frac{E}{KT}$$
(II.8)

Avec:

A: constante caractéristique du matériau.

B: constante de dégradation thermique,  $B = \frac{E}{K}$ 

E: énergie d'activation du phénomène en J/mole.

K: constante des gaz parfaits.

T: température absolue en K.

D'autres auteurs [73] ont proposé une relation analogue à II.4

$$t = C \exp^{-B/T}$$
(II.9)

Avec:

C, B: constantes caractéristiques du matériau.

T: température absolue en K.

En vertu de la loi d'Arrhenius, la caractéristique Ln t en fonction de (1/T) est une droite si la dégradation thermique est gouvernée par un processus unique. Dans certains cas, cette caractéristique peut avoir une cassure [74]. D'une manière générale, on peut admettre pour le matériel des durées de vie de 25 à 30 ans pour une utilisation annuelle de 2000 à 7500 heures environ. Pour du matériel plus petit, des durées de vie de 2000 à 100000 heures sont probablement plus réalistes [48].

#### II.4.2.4. Modèle d'Eyring

Le modèle d'Eyring considère que la dégradation thermique est un processus thermodynamique. Il constitue dans certains cas une alternative pour le modèle Arrhenien [75]. Le modèle d'Eyring est donné par la relation suivante :

$$t = \frac{h}{KT} \exp \frac{\Delta G}{KT} = \frac{h}{KT} \exp \frac{\Delta H}{KT} \exp \frac{-\Delta S}{K}$$
(II.10)

#### Où :

 $\Delta G$ : énergie libre de Gibbs ( $\Delta G = \Delta H - T \Delta S$ )  $\Delta H$ : énergie enthalpique d'activation  $\Delta S$ : énergie entropique d'activation h: constante de Planck K: constante de Boltzmann des gaz parfaits T: température absolue en K.

La détermination de  $\Delta H$  et  $\Delta S$  s'effectue graphiquement en représentant log t en fonction de 1/T.

#### II.4.3. Cas de contraintes multiples

Dans le cas réel du vieillissement, les câbles sont soumis simultanément au champ électrique et à la température. Plusieurs modèles de durée de vie ont été développés et publiés. Nous pouvons citer les travaux de Fallou [6], de Ramu [76-78], de Simoni [7,51, 79-82], de Montanari [83-87] et de Crine [88, 89,96].

#### II.4.3.1. Modèle de Fallou

Le modèle de Fallou repose sur la loi d'Arrhenius [6]. La durée de viet en fonction de la température est donnée par l'expression suivante :

$$t = \exp\left(A(E) + \frac{B(E)}{T}\right)$$
(II.11)

Où :

$$A(E) = A_1 + A_2 E$$
,  $B(E) = B_1 + B_2 E$ 

Les constantes  $A_1$ ,  $A_2$ ,  $B_1$  et  $B_2$  sont déterminées expérimentalement à partir des temps de claquage à une température constante.

Le modèle de Fallou peut s'écrire sous une autre formulation :

$$t = A \left( \exp(A_2 E) \exp \frac{B_1}{T} + \exp \frac{B_2 E}{T} \right)$$
(II.12)

Où A est une nouvelle constante.

L'extrapolation aux champs très faibles doit être exécutée avec beaucoup de précaution du fait que le modèle ne prend pas en considération l'existence du champ seuil.

#### II.4.3.2. Modèle de Ramu

Dans ce modèle, la dégradation du système d'isolation est attribuée principalement au champ électrique, et la contrainte thermique n'est qu'un facteur catalyseur dans le mécanisme de vieillissement combiné. La loi de Ramu repose sur la relation d'Eyring en prenant en considération les seuils du champ électrique et de la température [90]. Le modèle de Ramu s'énonce comme suit [76-78]:

$$t(T,E) = K(T) \left[\frac{E}{E_s}\right]^{-n(T)} \exp(-B\Delta T)$$
(II.13)

Où :

t (T, E) : durée de vie du système sous l'action combinée de la température et du champ

- E : champ électrique appliqué
- Es : champ électrique seuil
- T : température de vieillissement
- B : constante d'Arrhenius

K (T), n (T) : paramètres de la loi de puissance inverse

$$K(T) = \exp(K_1 - K_2 T), n(T) = n_1 - n_2 \Delta T$$

$$\Delta T = \frac{1}{T_0} - \frac{1}{T}$$

T<sub>0</sub> : température ambiante.

Les constantes B, K1, K2, n1 et n2 sont déterminées expérimentalement.

#### II.4.3.3. Modèle de Simoni

Simoni [7,51] a développé une relation générale pour la modélisation mathématique du processus de vieillissement des câbles isolés. Le modèle repose sur une approche physicochimique concernant la dégradation des matériaux isolants. La loi générale de Simoni est une combinaison du modèle de puissance inverse du vieillissement électrique et du modèle d'Arrhenius utilisé dans le vieillissement thermique.

La durée de vie du câble selon le modèle de Simoni est donnée par :

$$t(T,E) = t_0 \left[\frac{E}{E_0}\right]^{-(n-b\Delta T)} \exp(-B\Delta T)$$
(II.14)

Où :

- t : durée de vie du câble
- $t_0$ : durée de vie à la température ambiante en absence du champ électrique
- E : contrainte électrique (champ)
- E<sub>0</sub> : champ électrique de référence correspondant à t<sub>0</sub> dans la loi de puissance inverse

$$\Delta T = \frac{1}{T_0} - \frac{1}{T}$$

T : température absolue de vieillissement

T<sub>0</sub>: température ambiante

- n : constante du modèle de puissance inverse
- B : constante du modèle d'Arrhenius
- b : constante du modèle de contraintes combinées.

Les données des essais ont confirmé la validité du modèle de Simoni [51,91-93]. En effet, il existe une bonne concordance notamment pour les contraintes élevées. Cependant, sous les faibles contraintes (conditions de service) la concordance n'est pas toujours parfaite. De nombreuses expériences ont confirmé l'existence d'un champ électrique seuil au-dessus duquel il n'y a aucun vieillissement électrique de l'isolation [91,93]. Le concept de la température seuil a également été introduit [51]. Il a été remarqué que le champ seuil varie avec la température de vieillissement. D'une manière similaire, la valeur de la température seuil varie en fonction de la contrainte électrique appliquée. En tenant compte du concept de la valeur seuil de la contrainte, le modèle de Simoni donnant la durée de vie du câble sous l'action de contraintes multiples (combinées) peut être énoncé selon la relation suivante [51,79-82]:

$$t(T,E) = K_m t_0 \left[\frac{E}{E_0}\right]^{-(n-b\Delta T)} \frac{\exp(-B\Delta T)}{E/E_{t_0} + \Delta T/\Delta T_{t_0} - 1}$$
(II.15)

Où :

K<sub>m</sub>: constante dépendant des caractéristiques de l'isolation  $E_{t0}$ : champ électrique seuil à la température ambiante  $T_{t0}$ : température seuil en absence du champ électrique. 1 1

$$\Delta T_{t_0} = \frac{1}{T_0} - \frac{1}{T_{t_0}}$$
#### II.4.3.4. Modèle probabilistique de Montanari

Le modèle probabilistique de Montanari [83] appelé aussi le modèle de puissance inverse à seuil (IPTM), constitue une approche différente pour la détermination de la durée de vie des systèmes d'isolation sous contraintes combinées. Il utilise la loi de puissance inverse modifiée sous une autre forme (légèrement différente) en proposant une nouvelle expression pour l'exposant n :

$$n = \frac{n_C}{\left(1 - \frac{E_S - E}{E_S - E_T}\right)^{\nu}}$$
(II.16)

Avec :

E<sub>T</sub>: champ électrique seuil à la température T

E<sub>S</sub> : champ électrique de référence

 $n_C(T)$ : coefficient d'endurance initiale dépendant de la température

v = v(T) : paramètre de forme.

Le modèle de Montanari repose également sur la statistique de Weibull particulièrement celle à deux paramètres dont la fonction cumulative de distribution s'écrit comme suit [68, 94, 95] :

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

Avec :

F(t) : probabilité de rupture

t : temps de claquage (t>0)

 $\alpha$  : paramètre d'échelle ( $\alpha > 0$ )

 $\beta$  : paramètre de forme. ( $\beta > 0$ ).

En substituant le paramètre d'échelle dans la fonction de Weibull et en adoptant la loi de puissance inverse modifiée, le modèle s'énonce comme suit [84-87] :

$$F(t, E, T) = 1 - \exp\left(\frac{-t}{t_s} \left(\frac{E}{E_s}\right)^n\right)^{\beta(E,T)}$$
(II.18)

Où :

t<sub>S</sub> : le temps de claquage sous la contrainte électrique seuil E<sub>S</sub>

 $\beta$  (E,T) : paramètre de forme de Weibull relatif à la tension de claquage.

Pour une probabilité p donnée, la relation de Montanari peut être donnée par :

$$t_{F_P} = t_S \left[\frac{E_S}{E}\right]^n \left[-\ln(1-P)\right]^{\frac{1}{\beta(E,T)}}$$
(II.19)

Les paramètres (t<sub>s</sub>, n<sub>c</sub>, E<sub>T</sub>, v,  $\beta$ ) sont déterminés expérimentalement.

#### II.4.3.5. Modèle de Crine

J. P. Crine propose un modèle physique [88, 89,96] basé sur la théorie cinétique de dégradation pour expliquer le processus de vieillissement des matériaux isolants. Le modèle considère que la contrainte électrique ou autre type de contrainte réduit le niveau de la barrière d'énergie contrôlant le processus (théorie des bandes). Le temps nécessaire pour franchir la barrière peut se traduire par la durée de vie t [88] :

$$t = \frac{h}{KT} \exp \frac{\Delta G}{KT} \csc h \left[ \frac{e\lambda E}{KT} \right]$$
(II.20)

Avec :

 $\lambda$ : largeur de la barrière (ou libre parcours moyen des porteurs de charges). Les autres paramètres ont déjà été définis dans les modèles précédents.

Dans les régions à champ électrique élevé et au-dessus d'une valeur critique de la contrainte  $E_C$ , la relation de Crine peut être réduite comme suit :

$$t \approx \frac{h}{KT} \exp\left[\frac{\Delta G - e\lambda E}{KT}\right]$$
 (II.21)

Il a été rapporté par J. P. Crine et *al.* [96] qu'une bonne concordance existe entre ce modèle et les données des essais de vieillissement sur les câbles isolés au PE, EPR et PRC.

#### **BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE II**

- [1] IEC 505, "Evaluation and Identification of Electrical Insulation Systems, Part 1: General Principles and Guide to Applications", 1975.
- [2] IEEE Standard 1064-1991, "Guide for Multifactor Stress Functional Testing of Electrical Insulation Systems", 1991.
- [3] T. W. Dakin, "Electrical Insulation Deterioration Treated as a Chemical Rate Phenomenon", AIEE Transactions, Part I (Communication and Electronics), Vol. 67, pp. 113–122, 1948.
- [4] F. H. Kreuger, "Endurance Test with Polyethylene Insulated Cables", CIGRE N°. 21- 02, 1968.
- [5] C. Simon, "Recherche de la fiabilité des câbles exposés à des contraintes du gradient électrique", RGE tome. 80, N°. 11, pp. 831-836, 1971.
- [6] B. Fallou, C. Burguiere, J. F. Morel, "First Approach on Multiple Stress Accelerated Life Testing of Electrical Insulation", Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, pp. 621-628, October 1979.
- [7] L. Simoni, "General Equation of the Decline in the Electric Strength for Combined Thermal and Electrical Stresses", IEEE Trans. on Elect. Insul., Vol. 19, N°. 1, pp. 45-52, 1984.
- [8] A. Motori, F. Sandrolini, G. C. Montanari, L. Gherardi, "A Contribution to the Investigation of Aging Mechanisms in XLPE Cables" IEEE Int. Symp. on Elect. Insul., Washington D. C, pp. 1-5, June 8-11, 1986.
- [9] B. Hemalatha, T.S. Ramu, "Insulation Degradation under Multifactor Stress", Fifth International Symposium on HV Engineering (ISH), Braunschweig, Germany, August 1987.

- [10] C. Simon, "Champs de seuil et fiabilité des câbles haute tension", Journées d' Études Internationales sur les Câbles d' Énergie à Isolant Synthétique, pp. 226-232, 1987.
- [11] Kiati and al., "Long Term Aging Phenomena of XLPE Cable", JICABLE '87, pp. 446, 1987.
- [12] A. Motori, F. Sandrolini, G. C. Montanari, "Chemical, Physical and Micro-structural Properties of Thermally Aged XLPE Cables Models", IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol. 16, pp. 764 - 768, 1988.
- [13] V. K. Agarwal, "Aging of Multi-stressed Polymeric Insulators: A Bibliographic Survey", IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol. 24, N°. 3, pp. 741-764, 1989.
- [14] P. Cygan, J. R. Laghari, "Models for Insulating Aging under Electrical and Thermal Multi-stress", IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol. 25, N°. 5, pp. 923-934, October 1990.
- [15] C. Mayoux, "Aging of Polymeric Insulating Materials in Power Cables", IEEE, Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 4, N°. 6, pp. 665–673, December 1997.
- [16] A. C. Gjaerrde, "A phenomenological Aging Model for Combined Thermal and Electrical Stress", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 4, N°. 6, pp. 674–680, December 1997.
- [17] S. B. Dalal, R. S. Gorur, M. L. Dyer, "Aging of Distribution Cables in Service and its Simulation in the Laboratory", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 12, N°. 1, pp. 139–146, February 2005.
- [18] J. L. Gardette, "Photo-dégradation des polymères", EDP Sciences, Echanges physique-Industrie, N°. 5, pp. 1–17, 2000.
- [19] J. Verdu, "Comportement à long terme", Techniques de l'ingénieur A 3150, A 9 I, 1980.
- [20] M. Chatin, "Plastiques", Techniques de l'ingénieur A3000, 1986.
- [21] J. Gossot, "Les matières plastiques Fabrication et technologie", Édition Dunod Technique, 1977.

- [22] J. Verdu, "Vieillissement des plastiques", AFNOR technique, Edition Eyrolles, Paris 1984.
- [23] J.P. Trotignon, "Précis de matières plastiques Structures, propriétés, mise en œuvre et normalisation", Edition Nathan, 1982.
- [24] J. Verdu, "Effet du vieillissement sur les propriétés mécaniques", EDP Sciences, Echanges physique-Industrie, N°. 5, pp. 19–23, 2000.
- [25] H. Burell, B. Immergut, "Polymer Handbook", Chap. IV, Wiley Interscience, New York, pp. 341–388, 1968.
- [26] A. Marcilla, S. Garcia, J. C. Garcia-Quesada, "Study of the Migration of PVC Plasticizers", Journal of Analytical and Applied Pyrolysis, Vol. 71, pp. 475-463, 2004.
- [27] A. Jiménez, L. Torre, J. M. Kenny, "Thermal Degradation of Polyvinyl Chloride Plastisols Base on Low-Migration Polymeric Plasticizers", Polymer Degradation and Stability, Vol. 73, pp. 447-453, 2001.
- [28] L. Boukezzi, "Influence du vieillissement thermique sur les propriétés électriques et mécaniques du polyéthylène réticulé chimiquement utilisé dans l'isolation des câbles moyenne tension – Essais sur éprouvettes-", Thèse de Magister, ENP 2000.
- [29] A. Boubakeur, M. Nedjar, R. Khaili, "Étude des propriétés électriques du polychlorure de vinyle avant et après un vieillissement thermique", Numéro spécial AJOT Journal, Proceeding of CEA'94, Vol. 1, Alger, Mars 1995.
- [30] A. Boubakeur, M. Nedjar, R. Khaili, "Influence du vieillissement thermique sur les propriétés des câbles isolés au PVC", 1 <sup>ère</sup> Conférence Nationale sur la Haute Tension CNHT'95, Béjaïa, 1995.
- [31] M. Nedjar, "Influence du vieillissement thermique sur les propriétés du PVC utilisé dans l'isolation des câbles de HT", Thèse de Magister, UMMTO, Tizi-ouzou, 1991.
- [32] A. Boubakeur, M. Nedjar, R. Khaili, "Influence of Thermal Ageing on the Properties of PVC", 2<sup>nd</sup> Middle East Power System Conference, MEPCON'92, pp. 124-127, Assiut University, Egypt 1992.
- [33] J. Verdu, "Vieillissement chimique", Techniques de l'ingénieur A3151, 1980.

- [34] L. C. E. Struik, "Physical Aging in Amorphous Polymers and other Materials", Elsevier, Amsterdam, 1978.
- [35] J. P. Mercier, E. Maréchal, "Chimie des Polymères Synthèse, Réaction, Dégradation", Presses Polytechniques et Universitaires Romandes, 1988.
- [36] M. Fontanille, Y. Gnanou, "Chimie et physico- Chimie des Polymères", 2<sup>ème</sup> et 3<sup>ème</sup> cycles, Ecole d'ingénieurs, Edition Dunod, Paris 2002.
- [37] D. J. Carlson, D. M. Wiles, "Degradation", Encyclopedia of Polymer Science and Engineering, Wiley-Interscience, Vol. 4, pp. 630, New York 1986.
- [38] N. Grassie, "Development in Polymer Degradation", Applied Science Publishers, Vol. 5, London 1984.
- [39] N. Grassie, G. Scott, "On Polymer Degradation and Stabilization", Cambridge University Press, Cambridge, U.K. 1988.
- [40] T. Kleen, "Polymer Degradation", Van Nostrand Rheinold, New York, 1983.
- [41] H. G. Elias, "Macromolecules", Vol. 2, Chap. 23, Wiley, New York, 1977.
- [42] H. Sawada, "Depolymerization", Encyclopedia of Polymer Science and Engeneering, Wiley-Interscience, Vol. 4, pp. 719, New York, 1986.
- [43] S. Stivala, J. Kimura, S. M. Gabay, "On Degradation and Stabilization of Polyolefins", Ed. N.S. Allen, Applied Science Publishers, pp. 63, London, 1984.
- [44] J. P. Crine, H. St. Onge, "Evaluation of Ageing in Transmission and Distribution Extruded Dielectric Cables", RGE, N°. 3, Mars 1988.
- [45] J. P. Crine, "Application of the Rate Theory to Polymers Thermal Ageing and Mechanical Breakdown", American Chemical Society, Chicago, August 1993.
- [46] M. Folie, "Contribution à l'étude du vieillissement des matériaux macromoléculaires synthétiques", Bulletin de la Direction des Etudes et Recherches, EDF, Série B, N°. 2, pp. 115–146, 1963.

- [47] P. Belloc, B. Fallou, "Étude de vieillissement thermique des matériaux utilisés dans la construction des câbles électriques", RGE, N°. 1, pp. 243 – 246, janvier 1970.
- [48] J. Carlier, "L'endurance thermique des isolants et systèmes d'isolation. Incidence dans la construction des matériels. Classification thermique des systèmes d'isolation des machines électriques de grande puissance", RGE N° 7/8, pp. 467-469, Juillet-Août 1974.
- [49] E. Moriamé, "L'endurance thermique des isolants et systèmes d'isolation. Incidence dans la construction des matériels. Nouvelles règles pour la détermination de l'endurance thermique des matériaux ", RGE N°7/8, pp. 452 - 466, Juillet-Août 1974.
- [50] E. Moriamé, "L'endurance thermique des isolants et systèmes d'isolation. Incidence dans la construction des matériels. Indice de température, Contrôle de vieillissement thermique de différents matériaux isolants", RGE N°7/8, pp. 445 - 451, Juillet-Août 1974.
- [51] L. Simoni, "A general Approach to the Endurance of Electrical Insulation under Temperature and Voltage", IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol. 16, N°. 4, pp. 277-289, August 1981.
- [52] C. Stevens, A. G. Day, B. Fallou, "Méthodes complémentaires aux essais d'endurance thermique des matériaux isolants", CIGRE, Rapport 15-05, pp .1-8, Septembre 1982.
- [53] S. Hirabayashi et al., "Comportement sous contraintes multiples de matériaux isolants et systèmes d'isolation", CIGRE, Rapport 15-03, 1984.
- [54] K. M. Mathes, "Thermal Ageing of Electrical Insulation, Technology and Standardisation", IEEE International Conference on Properties and Applications of Dielectric Materials, pp. 299–307, 1985.
- [55] G. C. Montanari, G. Pattini, L. Simoni, "Long-term Behavior of XLPE Insulated Cable Models", IEEE Transactions Power Delivery, Vol. 2, N°. 3, pp. 596-602, July 1987.
- [56] R. Fournie et al., "Essais d'évaluation et méthodes de diagnostic pour estimer la durée de vie et détecter les défaillances des matériels électriques", Bulletin de la Direction des Etudes et Recherches, EDF, Série B, N°. 4, pp. 45–59, 1988.

- [57] J. Peinan, W. Shude, D. Wuyi, "Estimation and Analysis of XLPE Cable Life in China" IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol. 4, pp. 654-667, 1988.
- [58] K. Kaminaga and al., "Long Term Test of 500 kV XLPE Cables and Accessories", CIGRE Report, N° 21-202, 1996.
- [59] IEC 216, "Guide for the Determination of Thermal Endurance Properties of Electrical Insulating Materials. Part 1: General Guidelines for Aging Procedures and Evaluation of Test Result", 4 <sup>th</sup> Issue, 1991.
- [60] IEC 611, "Guide for the Preparation of Tests Procedures for Evaluating the Thermal Endurance of Electrical Insulation Systems", 1978.

CEI 611, "Guide pour la préparation de procédures d'essai pour l'évaluation de l'endurance thermique des systèmes d'isolation électrique", Edition 1978.

- [61] IEC 1026 Standard, "Guidelines for Application of Analytical Test Methods for Thermal Endurance Testing of Electrical Insulating Materials", Edition 1991.
- [62] J. F. Johnson, J. H. Groeger, M. S. Mashikian, B. S. Bernstein, A. R. Cooper, "Méthodes analytiques sensibles de diagnostic précoce du vieillissement dans une isolation solide sous contrainte de tension", CIGRE, Rapport 15-05, pp. 1-6, 1988.
- [63] P. Paloniemi, P. Lindstrom, "Application of the Equalised Ageing Process Method on Thermal Endurance Testing of Polyhydratation film", IEEE Transactions on Electrical Insulation, June 1976.
- [64] B. Fallou, "Comportements spécifiques des matériaux isolants soumis à diverses contraintes (chaleur, champ électrique, radiation)", RGE N°.10, pp. 756-767, 1985.
- [65] B. Fallou, "Caractéristiques des isolants solides, méthodes de mesure, valeurs et signification", Technique de l'Ingénieur, D 214 et D 215, 1970.

[66] I. Bazovski, "Fiabilité, théorie et pratique de la sûreté de fonctionnement", Édition Dunod, 1966.

[67] F. W. Peek, "Dielectric phenomena high voltage engineering", MC Graw Hill, 1929.

- [68] IEEE, "Guide for the Statistical Analysis of Electrical Insulation Voltage Endurance Data", ANSI/ IEEE Std. 930, 1987.
- [69] L. Deschamps, C. Caillot, M. Paris, J. Perret, "L'utilisation des matériaux synthétiques pour l'isolation des câbles HT et THT", RGE N°. 5, pp. 343–360, Mai 1983.
- [70] S. Zoledziowski, A. Sierota, "Physical and Statistical Aspects of Breakdown Characteristics of Solids Dielectrics", IEE Dielectric Materials Measurements and applications, pp. 84-87, 1992.
- [71] H. Hirose, "A method to Estimate the Lifetime of Solid Electrical Insulation", IEEE Trans. on Elect. Insul., Vol. 22, N° .6, pp. 745-753, 1987.

[72] R. Fournie, "Les isolants en électrotechnique, Essais, Mécanismes de dégradation, Applications industrielles", Édition Eyrolles, 1990.

- [73] L. Simoni, "Ageing Theory of Engineering Materials", Alra Frequenza, Vol. 42, N°. 10, pp. 501–509, October 1973.
- [74] R. A. Sellers and al., "Rapport", General Electric Company, Major Appliance Laboratory, 1976.
- [75] J. P. Crine, "A Molecular Model to Evaluate the Impact of Aging Space Charges in Polymer Dielectrics", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 4, N°. 5, pp. 487-495, October 1997.
- [76] T. S. Ramu, K. P. Mammootty, "Analysis of Combined Electrical and Thermal Stress Ageing of Capacitor and Rotating Machine Insulation Systems", Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, pp. 135-140, 1983.
- [77] T. S. Ramu, "On the Estimation of Power Apparatus Insulation under Combined Electrical and Thermal Stress", IEEE Trans. Electr. Insul., Vol. 20, pp. 70-78, 1985.
- [78] B. Hemalatha, T. S. Ramu, "Insulation Degradation under Multifactor Stress", 5<sup>th</sup> International Symposium on High Voltage Engineering, Braunschweig, West Germany, August 1987.

- [79] L. Simoni, "A Geometrical Approach to Multistress Tests of Materials in order to Evaluate their Ability to Endure Multistress Conditions", Proc. IEEJ Conf. EL. Ins., pp. 13-21, Tokyo, 1985.
- [80] L. Simoni, "Application of a New Geometrical Approach to Determination of Combined Stress Endurance of Insulating Materials", IEEE Trans. on. Electr. Insul., Vol. 23, N°. 3, pp. 489-492, June 1988.
- [81] L. Simoni, G. Mazzanti, G. C. Montanari, L. Lefebre, "A General Multi-stress Life Model for Insulating Materials with or without Evidence of Threshold", IEEE Trans. on. Electr. Insul., Vol. 28, N°. 4, pp. 349-364, June 1993.
- [82] L. Simoni, G. Mazzanti, G. C. Montanari, "Life Models for Insulating Materials in Combined –Stress Conditions", IEEE ICPADM, pp. 827-832, Brisbane, Australia, July 1994.
- [83] G. C. Montanari, M. Cacciari, "A probabilistic Life Model for Insulating Materials Showing Electrical Thresholds", IEEE Trans. on. Elect. Insul., Vol. 24, N°.1, pp. 127-137, February 1989.
- [84] G. C. Montanari, "Electrical Life Threshold Models for Insulating Materials Subjected to Electrical and Multiple Stresses. Part 1: Investigation and Comparison Life Models", IEEE Trans. on. Elect. Insul., Vol. 27, N°. 5, pp. 974- 986, October 1992.
- [85] G. C. Montanari , L. Simoni, "Aging Phenomenology and Modelling", IEEE Trans. on. Elect. Insul., Vol. 28, N°. 5, pp. 755- 776, October 1993.
- [86] G. C. Montanari, G. Mazzanti, "From Thermodynamic to Phenomenological Multi-stress Model for Insulating Materials without or with Evidence of Threshold", Journ. of Phys. D: App. Phys., Vol. 27, pp. 1691-1702, August 1994.
- [87] G. C. Montanari, "A Comparative Investigation of Electro-thermal Endurance Models for Insulating Materials and Systems Characterization", IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 13, N°. 13, pp. 13-25, May/June 1997.
- [88] J. P. Crine, J. L. Parpal, Ch. Dang, "A New Approach to the Electric Aging of Dielectrics" Proceedings of CEIDP, Leesburg, Virginia, 1989.

- [89] J. P. Crine, "A Model of Solid Dielectrics Aging", IEEE Conference Record of the International Symposium of Electrical Insulation, Toronto, Canada, pp. 25-26, June 1990.
- [90] J. R. Laghari, "Complex Electrical, Thermal and Radiation Aging of Dielectrics Films", IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol. 28, N°. 5, pp. 777-788, October 1993.
- [91] G. C. Montanari, G. Pattini, "Planning of Combined Stresses Tests on Insulating Materials" ETG Conf., Berlin, Germany, pp. 39-43, 1985.
- [92] M. Pays, M. Louis, J. Peret, C. Alquie, J. lewiner, "Behavior of Extruded HVDC Power Transmission Cables: Tests on Materials and Cables" CIGRE Session 21-07, pp. 1-11, 1988.
- [93] G. C. Montanari, G. Pattini, L. Simoni, "Long-Term Behavior of XLPE Insulated Cable Models", IEEE Trans. Power Delivery, PWRD-2 (3) pp. 596-602, 1987.
- [94] G. C. Stone, R. G. Van Heeswijk, "Parameter Estimation for the Weibull Distribution", IEEE Trans. on Elect. Insul., Vol. EI-12, N°. 4, pp. 253-261, August 1977.
- [95] G. C. Stone, "The Application of Weibull Statistics to Insulation Aging Tests", IEEE Trans. Electr. Insul., Vol. 14, pp. 233-239, 1979.
- [96] J. P. Crine, J. L. Parpal, G. Lessard, "The Compensation Law and Polymer Aging Relaxations", Proc. 3<sup>rd</sup> Int. Conference on Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics, Trondheim, Norway, pp. 347-351, 1989.

### Chapitre 111

## TECHNIQUES EXPÉRIMENTALES

**D**ANS notre étude, nous nous sommes intéressés à l'influence du vieillissement thermique sur les propriétés diélectriques et mécaniques du polyéthylène réticulé chimiquement (PRC). Deux modes de vieillissement thermique ont été réalisés : le premier est continu et le second est cyclique. Des essais accélérés de vieillissement continu et cyclique respectivement durant 2000 heures et 20 cycles de chauffage et de refroidissement, suivis des essais diélectriques et mécaniques de diagnostic ont été effectués sur des échantillons de câbles 18/30 kV en PRC à quatre températures différentes variant de 80°C à 140°C. Nous avons mesuré la tension seuil d'apparition des décharges partielles U<sub>sdp</sub>, le facteur de pertes diélectriques tg\delta, la permittivité relative  $\varepsilon_r$ , l'allongement à la rupture et la résistance à la traction. Dans ce chapitre, une description détaillée de la station d'essai de vieillissement thermique, des câbles isolés au PRC, des dispositifs de mesure et de caractérisation ainsi que des techniques expérimentales que nous avons utilisés au niveau du Laboratoire Contrôle et Qualité de la Câblerie ENICA.Biskra est donnée.

#### **III.1. PRÉSENTATION DU CÂBLE**

Les essais ont été effectués sur des échantillons de câbles moyenne tension MT (18/30 kV), isolés au polyéthylène réticulé chimiquement (PRC) d'une longueur de 12 m, fournis par l'Entreprise Algérienne des Industries des Câbles (ENICA.Biskra). Le câble présente les caractéristiques suivantes [1] :

- Câble à champ radial.
- Tension nominale : 30 kV.
- Tension spécifiée : 18 kV.
- Section de l'âme : 120 mm<sup>2</sup> (en aluminium).
- Diamètre de l'âme : 12,7 mm.
- Nombre de brins : 35.
- Diamètre d'un brin : 2,15 mm.
- Épaisseur de l'isolant : 8 mm.
- Température assignée maximale de l'âme en service normal : 90°C.
- Température assignée maximale en régime de court-circuit : 250°C.
- Champ maximal à la surface de l'âme : 3,13 kV/mm.

Ces câbles sont fabriqués suivant le procédé de réticulation à l'azote chauffé. Le procédé consiste en l'extrusion d'un mélange de PEbd 4201 sous forme de granulés (fournis par Union Carbide USA), contenant un antioxydant, le santonox R à raison de 0,2 % et de péroxyde de dicumyle (2 % en teneur massique). La réticulation par voie thermo-chimique sous gaz inerte chauffé utilisée par la câblerie ENICA.Biskra, s'effectue dans un tube rempli du gaz d'azote porté à une température de l'ordre de 300°C à 400°C (selon la vitesse du câble) sous une pression de 10 bars. Le refroidissement se fait dans un autre tube rempli d'eau également sous la même pression.

#### III.1.1. Constituants du câble

Les câbles (figure III.1) sont constitués d'une âme centrale conductrice contenant plusieurs brins en Aluminium. Autour de cet ensemble de conducteurs se trouve un matériau semi-conducteur (SC) destiné à homogénéiser le champ électrique à l'interface entre le semi-conducteur et l'isolant. Cet écran est obtenu en ajoutant du noir de carbone dans un polymère. Sa conductivité est en général comprise entre 0,1 S.cm<sup>-1</sup> et 1 S.cm<sup>-1</sup>. Puis se trouve la partie essentielle qui est le matériau isolant (PRC). Le tout ainsi formé est recouvert d'une seconde couche de matériau semi-conducteur. La fabrication des câbles en PRC se fait en co-extrudant l'ensemble des trois couches SC/PRC/SC sous forte pression (triple extrusion), de façon à obtenir un matériau le plus homogène possible et surtout exempt de défauts (vacuoles).

L'ensemble est recouvert d'un écran conducteur relié à la terre, dont le rôle est multiple : il sert de blindage afin d'empêcher la propagation du flux élecromagnétique, il assure également le retour du courant en cas de court-circuit, et il permet aussi d'éviter l'intrusion d'humidité. Ce conducteur peut être soit en métal pur (cuivre), soit en alliage. La dernière couche est une gaine en PVC (polychlorure de vinyle). Sa fonction est double : elle isole l'environnement de la partie extérieure et elle protège le câble des agressions extérieures telles que la corrosion ou bien l'usure mécanique.



Figure III.1. Schéma du câble 18/30 kV isolé au PRC.

- (1) Âme conductrice en Aluminium.
- (2) Écran semi-conducteur interne extrudé sur âme.
- (3) Enveloppe isolante en PRC.
- (4) Écran semi-conducteur externe extrudé sur isolant.
- 5 Matelas de protection.
- (6) Écran métallique en cuivre.
- 7) Étanchéité gonflable.
- (8) Gaine de protection en PVC.

#### III.1.2. Propriétés du compound

Les propriétés du compound (PEbd sous forme de granulés), matériau de base de l'isolation du câble sont [2] :

a) Enveloppe isolante : HFDE 4201 EC (Extra Clean).

- Permittivité relative : 2,30.
- Facteur de pertes diélectriques à 60 Hz :  $3 \times 10^{-4}$
- Résistance volumique en courant continu à  $23^{\circ}$ C >  $10^{15}$   $\Omega$ cm.
- Densité à 23°C : 0,92 g/cm<sup>3</sup>.
- Résistance à la rupture en traction : 180 kg/cm<sup>2</sup>.
- Allongement à la rupture : 500 %.
- Degré de réticulation : 18 %.
- b) Écran semi-conducteur : HFDA 0611 BLCK55
- Densité : 1,13.
- Résistance volumique à 23°C : 450  $\Omega.cm.$

#### **III.2. DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX**

Dans ce qui suit, nous décrivons les différentes techniques expérimentales utilisées lors des essais de vieillissement thermique des câbles en PRC.

#### III.2.1. Description de la station de vieillissement thermique

Les essais ont été réalisés dans la station de vieillissement thermique du Laboratoire de Contrôle et Qualité de la Câblerie ENICA.Biskra. Des échantillons de câbles unipolaires moyenne tension 18/30 kV isolés au PRC d'une longueur de 12 m ont été vieillis thermiquement à quatre températures de vieillissement : 80°C, 100°C, 120°C et 140°C sous deux modes différents : continu et cyclique (un échantillon par température et par mode). Les essais ont été effectués conformément aux recommandations des normes CEI [3-6] et des normes IEEE [7,8]. Dans le mode continu de vieillissement, les câbles ont été soumis à la chaleur pendant 2000 heures, alors que dans le mode cyclique, les câbles ont subi 20 cycles thermiques de chauffage et de refroidissement. Un cycle thermique comporte 8 heures de chauffage et 16 heures de refroidissement. Le chauffage se fait par circulation d'un courant alternatif induit dans l'âme conductrice jusqu'à ce que la température du câble atteigne la température de consigne de vieillissement. Le chauffage est réalisé au moyen d'un transformateur de type ET 250FL – 250 kVA - 380 / 25 V - 658 / 10000 A (figure III.2), qui alimente deux spires en court-circuit (boucles munies de deux extrémités et une jonction en

Aluminium), l'une formée par l'échantillon en essai et l'autre par l'échantillon témoin. Les deux échantillons sont identiques et par conséquent sont portés à la même température. L'échantillon témoin (image thermique de l'échantillon en essai) sert à prélever la température de vieillissement au moyen d'un thermocouple relié à un régulateur de température.



Figure III.2. Vue d'ensemble de la station de vieillissement thermique.

Le chauffage est interrompu toutes les 200 heures dans le mode continu et après chaque cycle de chauffage et de refroidissement dans le mode cyclique pour effectuer la mesure de la tension seuil d'apparition des décharges partielles  $U_{sdp}$ , du facteur de dissipation diélectrique tg $\delta$  et de la permittivité relative  $\varepsilon_{r}$ . Au cours de nos expériences, la tension d'essai a été appliquée entre l'âme conductrice et l'écran métallique du câble. Les essais mécaniques ont été faits avant et après vieillissement dans le laboratoire des essais mécaniques de la câblerie.

#### III.2.2. Mesure de la tension seuil d'apparition des décharges partielles

L'importance des décharges partielles dans les isolations électriques et plus particulièrement les câbles extrudés aux polymères synthétiques a conduit les chercheurs s'intéressant à ce domaine, à proposer des techniques diverses afin d'étudier le phénomène [9 -30]. En effet, l'étude des décharges partielles peut être entreprise sous bien des aspects :

celui de la détection et de la localisation des défauts correspondants, celui des conséquences électriques, celui de la prévision de la rupture, celui de la durée de vie des isolants, celui enfin des processus de dégradation dus à tous les phénomènes complexes dont les décharges sont le siège. Les décharges partielles existant dans un objet en essai, dans des conditions données, peuvent être caractérisées en utilisant différentes grandeurs mesurables telles que la charge, la fréquence de répétition, la tension seuil,...etc. Des méthodes non électriques de détection de décharges partielles sont également utilisées ; nous pouvons citer : les méthodes acoustiques et optiques. Ces méthodes ne conviennent généralement pas pour des mesures quantitatives de décharges partielles (D.P) et sont essentiellement utilisées pour localiser les décharges. Dans notre étude, nous avons mesuré la tension seuil d'apparition des décharges partielles  $U_{sdp}$ . En pratique, la tension seuil d'apparition de D. P ( $U_{sdp}$ ) est la tension la plus basse à laquelle l'intensité des décharges devient égale ou supérieure à une valeur faible spécifiée dépendant de la précision du dispositif de détection [31].

Le schéma électrique du dispositif de mesure des décharges partielles est représenté sur la figure III.3. Il est composé essentiellement de :

- une source de haute tension constituée d'un transformateur de puissance ASEA type TMZ 12 HAEFLY, 300 kVA, 380 V/ 60 kV ;
- un objet en essai (câble) qui, dans de nombreux cas, peut être considéré comme une capacité C ;
- un condensateur de liaison (couplage) Ck type NMCF 8000/50 SP ;
- un circuit de mesure composé de l'impédance de mesure  $Z_m$  type H253-1 qui se comporte comme un quadripôle dont la réponse en fréquence est choisie de telle sorte que la fréquence de la tension d'essai ne puisse être transmise au mesureur ;
- parfois une impédance ou un filtre Z (système à anneaux) pour empêcher que les impulsions dues aux décharges soient court-circuitées par la source à haute tension et pour réduire les perturbations provenant de la source.



- 3 Interrupteur de court-circuit
- 6 Détecteur d'impulsions de décha 7 Oscilloscope à deux voies

4 Impédance de mesure

Figure III.3. Schéma de principe pour la mesure des décharges partielles.

Le dispositif expérimental de mesure des décharges partielles est illustré par les photographies des figures III. 4 et III. 5.

Les phénomènes de décharges partielles sont généralement influencés par de nombreux paramètres et la reproductibilité des essais est donc relativement difficile. Les mesures sont également influencées par la valeur du bruit de fond (perturbation extérieure) qui doit être assez faible pour permettre une mesure des décharges suffisamment précise (il ne doit normalement pas dépasser 50 % du niveau de décharges partielles acceptable spécifié selon la norme CEI 270 [31]). Les perturbations proviennent par exemple de manœuvres dans d'autres circuits, de machines à collecteur, d'essais à haute tension exécutés dans le voisinage, d'émissions radioélectriques,...etc. Elles peuvent également se produire lorsque la source d'alimentation est connectée au circuit d'essai. Ces perturbations sont généralement croissantes avec la tension d'essai. Elles peuvent comprendre, par exemple, des décharges partielles dans le transformateur d'essai, ou des perturbations provenant d'étincelles dues à une mise à la terre imparfaite d'objets voisins.



Figure III.4. Système de mesure de D.P piloté par un ordinateur (Logiciel ICM compact HV).





Figure III.5. Vue d'ensemble des équipements de mesure de D.P (Cage de Faraday).

Des perturbations peuvent également être provoquées par les harmoniques de rang élevé de la tension d'essai qui sont compris dans la bande passante du mesureur. La réduction des perturbations est obtenue par une mise à la terre convenable de toutes les structures conductrices proches de l'aire d'essai et par un filtrage des réseaux d'alimentation des circuits d'essai et de mesure. La meilleure réduction est obtenue lorsque les essais sont effectués dans une salle blindée dont toutes les liaisons électriques sont faites par l'intermédiaire de filtres efficaces. En effet, les équipements de mesure de D.P que nous avons utilisés lors de nos expériences sont à l'intérieur d'une cabine blindée correspondant à une cage de Faraday (figure III. 5).

Les essais de décharges partielles ont été réalisés en augmentant progressivement, à partir d'une valeur faible, la tension alternative 50 Hz jusqu'à l'apparition de décharges partielles de 1 pC (charge apparente seuil d'apparition des décharges partielles à laquelle correspond la tension seuil de D.P U<sub>sdp</sub>). Les essais ont été réalisés à la température ambiante en plongeant les extrémités du câble dans une huile isolante (BORAK 22) contenue dans les boites d'extrémités (type EKP 75 kV) afin d'éviter les décharges par contournement et ce, conformément aux normes relatives aux décharges partielles [31-33]. La tension a été appliquée entre l'âme conductrice et l'écran métallique du câble. Les impulsions de courant dues aux décharges partielles engendrent un signal qui peut être détecté dans le circuit extérieur (impédance de mesure) relié à l'objet en essai (câble). Ce signal peut être visualisé sur un oscilloscope à deux voies ; il représente un train d'impulsions de décharges.

On relève la tension seuil d'apparition des décharges partielles  $(U_{sdp})$  à la température ambiante toutes les 200 heures de vieillissement continu et après chaque cycle dans le cas du vieillissement thermique cyclique.

## III.2.3. Mesure du facteur de pertes diélectriques et de la permittivité relative

Les pertes diélectriques sont en relation directe avec les pertes d'énergie diélectrique. Il est donc très important de contrôler tous les matériaux d'isolation, qui sont employés sous haute tension, au point de vue pertes diélectriques. Pour la mesure du facteur de pertes diélectriques et de la permittivité relative, nous avons utilisé un pont de Schering TETEX AG du type 5512 MO [34] dont le schéma de principe est représenté sur la figure III.6.



Figure III.6. Schéma de principe du pont de Schering TETTEX AG.

La mesure se réalise d'après un circuit de pont. La capacité à mesurer ( $C_x$ ) est comparée à une capacité étalon ( $C_N$ ) dont la capacité et le facteur de dissipation sont précisément connus. Cette capacité étalon doit être sans pertes, dans la mesure du possible. Le balancement du pont se fait par les variations d'une décade de résistances, d'un fil à curseur et d'une décade de capacités, jusqu'à ce que l'indicateur à zéro (Galvanomètre) reste en position O. D'après les valeurs des résistances  $R_3$ ,  $R_4$ , de la décade de capacité  $C_4$  et les données de la capacité étalon, le facteur de pertes diélectriques ou la capacité est lisible directement ou peut être calculé à l'aide d'une simple formule.

#### Pertes diélectriques :

 $tg\delta = R_4\omega C_4$  (Position II sur le schéma) car il s'agit de faibles pertes.

Capacité :

$$C_{x} [pF] = \frac{C_{N} R_{4}}{R_{3} + S}$$

La haute tension est délivrée au secondaire d'un transformateur élévateur de tension, 60 kVA - 500 V/ 60 kV dont le primaire est connecté au secteur 380 V, 50 Hz à travers un transformateur régulateur 52 kVA, 380 V/ 0......525V (figure III.7).



Figure III.7. Vue d'ensemble de la plate forme d'essais Haute Tension.

Nous avons mesuré la capacité du câble, et la valeur de la permittivité relative  $\varepsilon_r$  a été calculée en effectuant le rapport  $C_X / C_0$ ; capacité du câble contenant le diélectrique mesurée à l'aide du pont de Schering divisée par la capacité du câble sans le diélectrique (Voir Annexe A.1). L'ensemble du dispositif de mesure de tg $\delta$  et  $\varepsilon_r$  est donné aux figures III.8.





Figure III.8. Vue d'ensemble du dispositif de mesure de tg $\delta$  et  $\epsilon_r$  en fonction de la tension et de la température.

# III.2.4. Mesure de l'allongement à la rupture et de la résistance à la traction

Pour la mesure de l'allongement à la rupture et de la résistance à la traction, avant et après vieillissement, nous avons fait un prélèvement de cinq éprouvettes sous forme d'haltère de dimensions normalisées (figure III.9) de chaque câble vieilli et d'un câble non vieilli (témoin). Ces éprouvettes ont été prélevées au moyen d'un étau-limeur à des endroits différents de l'échantillon et à une même profondeur, selon les recommandations de la CEI 540 [35]. Pour cela nous avons découpé le câble en douze tronçons de 1 m et après avoir éliminé les tronçons d'extrémités, seuls les tronçons pairs ont été sélectionnés, et puis de chaque tronçon de 1 m nous avons prélevé une éprouvette haltère.



Figure III.9. Éprouvette sous forme d'haltère.

Avant chaque essai de traction, nous avons mesuré la section droite de l'éprouvette à essayer. Ensuite, cette dernière a été soumise à l'essai qui consiste à la rompre par traction au moyen d'un dynamomètre muni de deux mâchoires exerçant un effort de traction croissant (figure III.10). L'une des mâchoires est fixe et l'autre se déplace à une vitesse constante. On mesure simultanément l'allongement à la rupture et la résistance à la traction sur une même éprouvette. L'allongement à la rupture exprimé en pourcentage est mesuré entre deux repères fixés avant l'étirement à une longueur normalisée (20 mm). La résistance à la traction en N/mm<sup>2</sup> est obtenue en effectuant le rapport de la charge à la rupture par la section droite de l'éprouvette.



Figure. III.10. Vue d'ensemble du dispositif utilisé pour les essais mécaniques.

#### **BIBLIOGRAHIE DU CHAPITRE III**

- [1] B.P Polyethylene, Wire and cable compounds, Technigram WP 14/1F, December 1984.
- [2] Union Carbide Corporation Polyolefins Division, Polyethylene Compound HFDE-4201 Natural EC for Power Cable Insulation, 1981.
- [3] IEC 216, "Guide for the Determination of Thermal Endurance Properties of Electrical Insulating Materials. Part 1: General Guidelines for Aging Procedures and Evaluation of Test Result", 4 <sup>th</sup> Issue, 1991.
- [4] IEC 1858, "Standard Test Procedure for Thermal Evaluation of Electrical Insulation Systems", October 1996.
- [5] IEC 1026 Standard, "Guidelines for Application of Analytical Test Methods for Thermal Endurance Testing of Electrical Insulating Materials", Edition 1991.
- [6] IEC 505, "Evaluation and Qualification of Electrical Insulation systems Part2: Thermal, Electrical, Environmental, Mechanical and Multi-Factor".
- [7] IEEE Standards 99-1980, "Recommended Practice for the Preparation of Test Procedures for the Thermal Evaluation of Insulation Systems for Electrical Equipment", 1980.
- [8] IEEE Standards 1- 1986, "Standards General Principles for Temperature Limits in the Rating of Electrical Equipment and for the Evaluation of Electrical Insulation", 1986.
- [9] F. H. Kreuger, "Detection of Internal Discharges in Particular in HV Cables", CIGRE Report 204, 1958.
- [10] Y. Toriyama, H. Okamoto, M. Kanazashi, K. Horii, "Degradation of Polyethylene by Partial Discharge", IEEE Trans. Elec. Insul., Vol EI.2, pp. 83-92, August 1967.
- [11] F. H. Kreuger, "Discharge Detection in HV Equipment", Elsevier Publishing Company, INC. New York, pp. 50 – 52, 1964.
- [12] F. H. Kreuger, "Calibration, Recommended Means for Calibrating and Checking Discharge Detection Circuits", CIGRE Progress Report SC 21 – 01, Appendix 3, 1968.

- [13] F. H. Kreuger, "Discharge Measurements in Long Lengths of Cable. Prevention of Errors Due to Superposition of Traveling Waves", CIGRE Progress Report SC 21 – 01, Appendix 4, 1968.
- [14] J. H. Masson, "Discharge Detection and Measurements", Proc. Inst. Elec. Eng., Vol. 112, N°. 7, pp. 1407-1423, July 1965.
- [15] G. Mole, "Basic Characteristics of Corona Detector Calibrators", IEEE Transactions on Power Apparatus and systems, Vol PAS. 89, pp. 198-204, 1972.
- [16] R. Bartnikas, "Effect of Pulse Rise Time on the Response of Corona Detectors", IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol EI.7, pp. 3-8, 1972.
- [17] C. Mayoux, M. Goldman, "Partial Discharges in Solid Dielectrics and Corona Discharge Phenomena", J. Appl. Phys., Vol. 44, N°. 9, pp. 3940-3944, September 1973.
- [18] C. J. Mayoux, "Partial Discharge Phenomena and the Effect of their Constituents on Polyethylene", IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol EI.11, N°. 4, pp. 139-149, December 1976.
- [19] T. Tanaka, T. Okamato, "A Minicomputer-based Partial Discharge Measurements System", IEEE International Symposium on Electrical Insulation, pp. 86-89, 1978.
- [20] T. Okamoto, T. Tanaka, "Prediction of Treeing Breakdown from Pulse Height of Partial Discharge on Voltage-Phase Angle", J. Appl. Phys. Vol. 24, pp. 156-160, 1985.
- [21] T. Okamoto, T. Tanaka, M. Ieda, "Partial Discharge Characteristics in Phase domain for Various Cylindrical Voids", Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP), Xi'an, China, pp. 498-503, 1985.
- [22] T. Okamoto, T. Tanaka, "Novel Partial Discharge Measurement Computer-Aided Measurements Systems", IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol EI. 21, N°. 6, pp. 1015-1019, 1986.
- [23] T. Tanaka, "Internal Partial Discharge and Material Degradation", IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol EI. 21, N°. 6, pp. 899-905, 1986.
- [24] W. S. Zaengl, P. Osvath, H. J. Weber, "Correlation between the Bandwidth of PD-Detectors and its Inherent Integration Errors", RGE N°. 4, pp.1-14, April 1989.

- [25] E. Gulski, "Computer-aided Measurement of Partial Discharges in HV Equipment", IEEE Trans. Electr. Insul., Vol. 28, pp. 969-983, 1993.
- [26] E. Gulski, "Digital Analysis of Partial Discharges", IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul., Vol. 2, pp. 822-837, 1995.
- [27] R. Candela, G. Mirelli, R. Schifani, "Partial Discharge Recognition by Means of Statistical and Fractal Parameters and a Neural Network", IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul., Vol. 7, pp. 87-94, 2000.
- [28] M. M. A. Salama, R. Bartnikas, "Fuzzy Logic Applied to PD Pattern Classification", IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul., Vol. 7, pp. 118-123, 2000.
- [29] T. K. Abdel-Galil, Y. G. Hegazy, M. M. A. Salama, R. Bartnikas, "Partial Discharge Pulse Pattern Recognition Using Hidden Markov Models", IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul., Vol. 11, pp. 715-723, 2004.
- [30] J. Li, C. Sun, S. Grzybowski, C. D. Taylor, "Partial Discharge Image Recognition Using a New Group of Features", IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul., Vol. 13, pp. 1245-1253, December 2006.
- [31] IEC STANDARD 270, "Partial Discharge Measurements", 1981.CEI 270, "Mesure des décharges partielles", Édition 1981.
- [32] ASTM Standard D 1868-81, "Standard Method for Detection and Measurements of Partial Discharges (Corona) Pulses in Evaluation of Insulation Systems", 1981.
- [33] Central Electricity Generating Board, "Specification for Partial Discharge Testing of Bushings, Capacitors, Instruments Transformers and Switchgear of Rated Voltage 72 kV to 420 kV Inclusive", Specification CEGB-HVS 5, 1985.
- [34] Tettex AG. Instruments, Pont de Schering de mesure de précision commutable pour la HT et BT type 2801.
- [35] IEC 540, "Tests for Insulations and Sheaths of Electric Cables and Cords (Elastomeric and Thermoplastic Compounds)", 1983.

CEI 540, "Méthodes d'essais pour les enveloppes isolantes et les gaines des câbles électriques rigides et souples (Mélanges élastomères et thermoplastiques)", 1983.

Chapitre N

### **RÉSUTATS ET DISCUSSION**

**D**ANS ce chapitre, nous présentons les résultats expérimentaux obtenus lors des essais de vieillissement thermique accéléré réalisés sur des câbles isolés au polyéthylène réticulé chimiquement (PRC) sous deux modes différents : continu et cyclique. Des mesures diélectriques (facteur de pertes diélectriques tg\delta, permittivité relative  $\varepsilon_r$  et tension seuil d'apparition des décharges partielles  $U_{sdp}$ ) et mécaniques de diagnostic ont été effectuées toutes les 200 heures et après chaque cycle pour les deux modes continu et cyclique. Des mesures des propriétés des câbles en PRC en fonction de la température et de la tension d'essai ont été également effectuées avant et après vieillissement. Dans une étude comparative [1], des résultats montrant l'évolution des propriétés diélectriques et mécaniques du PRC constituant l'enveloppe isolante des câbles 18/30 kV ayant subi un vieillissement thermique sous les deux modes précités sont présentés. Nous tentons aussi d'interpréter et d'analyser ces résultats en se référant aux théories fondamentales de la physique, aux mécanismes physico-chimiques de dégradation et aux travaux antérieurs présentés dans la littérature.

#### IV.1. INFLUENCE DU VIEILLISSEMENT THERMIQUE SUR LES PROPRIÉTÉS DIÉLECTIQUES DU PRC

#### IV.1.1. Permittivité relative en fonction du temps de vieillissement

La permittivité relative  $\varepsilon_r$  appelée aussi constante diélectrique est une propriété fondamentale des diélectriques. La mesure de cette propriété constitue un outil de diagnostic et de caractérisation intéressant dans la mesure où elle nous renseigne sur l'état diélectrique d'une isolation. De ce fait, nous avons mesuré la permittivité relative du PRC, matériau isolant des câbles 18/30 kV, ayant subi un vieillissement thermique sous deux modes différents : continu et cyclique. Les essais ont été effectués conformément aux recommandations de la publication 540 de la CEI [2] à différents niveaux de tension : 0,5 U<sub>0</sub>, U<sub>0</sub>, 1,5 U<sub>0</sub> et 2 U<sub>0</sub> soient 9, 18, 27, et 36 kV et pour quatre températures différentes de vieillissement variant de 80°C à 140°C. Pour chaque température de vieillissement, les mesures ont été faites à quatre températures d'essais : 20, 80, 100, et 120°C toutes les 200 heures et après chaque cycle de chauffage et de refroidissement respectivement sous le mode continu et cyclique. La tension d'essai appliquée entre l'âme conductrice et l'écran métallique du câble est une tension alternative de fréquence industrielle 50 Hz.

Les résultats de mesure de la permittivité relative sont illustrés pour les deux modes de vieillissement appliqués, par température de vieillissement et par température d'essai et ce, pour les différents paliers de tension (figures IV.1.a,b,c,d à IV.8.a,b,c,d).

Dans une première analyse des résultats obtenus sous les deux modes d'exposition à la chaleur, nous avons constaté que la permittivité varie peu ou demeure pratiquement constante en fonction du temps de vieillissement. Un résultat similaire a été trouvé par un groupe de chercheurs sur des échantillons de câbles 6 kV en PRC ayant subi des vieillissements électrique, thermique et combiné pendant 3000 heures [3]. La légère variation observée sur quelques courbes serait due à la variation du temps de relaxation  $\tau$  (temps moyen séparant deux chocs consécutifs subis par un dipôle) caractérisant l'oscillation des dipôles [4]. Le temps de relaxation dépend de la température et est donné par l'expression d'Arrhenius suivante [5] :

$$\tau = \operatorname{A}\exp(\Delta H \,/\, KT)$$

Avec :

- A : constante
- H : énergie caractérisant la bande d'absorption considérée (J/mole)
- K : constante des gaz parfaits (J/ mole K)
- T : température absolue (K).



**Figure IV. 1.** Permittivité relative en fonction du temps de vieillissement continu à la température de 80°C.



**Figure IV. 2.** Permittivité relative en fonction du temps de vieillissement cyclique à la température de 80°C.

Dans ce qui suit, nous analyserons les résultats obtenus de la permittivité dans une approche comparative et ce, pour chaque température de vieillissement.

Sous le mode continu de vieillissement à la température 80°C de (proche de celle tolérée en service), la constante diélectrique, mesurée à la température ambiante, reste pratiquement constante en fonction du temps d'exposition à la chaleur et a pour valeur 2,56 jusqu'à 1200 heures de vieillissement. Au delà de ce temps, la permittivité diminue légèrement pour atteindre une valeur de 2,52 à partir de 1400 heures qui demeure constante jusqu'à 2000 heures. On peut estimer le taux de variation de la constante diélectrique à 1,56 % par rapport à la valeur initiale (figure IV.1.a). Sous le vieillissement cyclique à la même température d'essai et aux mêmes conditions de mesure, la permittivité conserve une valeur constante (2,58) en fonction du nombre de cycles de vieillissement (figure IV.2.a).

A la température d'essai de 80°C (figure IV.1.b), la permittivité présente un comportement pratiquement similaire à celui obtenu à la température ambiante en fonction du temps de vieillissement. En effet,  $\varepsilon_r$  demeure constante (2,49) jusqu'à 1400 heures de chauffage pour marquer une relative diminution (avec un taux de variation de 2,81 %) en passant à 2,42 à partir de 1700 heures jusqu'à 2000 heures. En fonction du nombre de cycles, la constante diélectrique garde une valeur constante autour de 2,41 à la température d'essai de 80°C (figure IV.2.b).

A la figure IV. 1.c, la permittivité, mesurée à la température d'essai de 100°C, présente une valeur de 2,47 jusqu'à 1300 heures, ensuite diminue (avec un taux de variation de 6 %) pour atteindre 2,32 à 2000 heures de vieillissement. L'allure de la permittivité obtenue à 100°C, illustrée à la figure IV.2.c, montre que  $\varepsilon_r$  conserve une valeur pratiquement constante autour de 2,33 en fonction du nombre de cycles et ce, à partir du cinquième cycle. De légères variations ont été enregistrées durant les premiers cycles de vieillissement ;  $\varepsilon_r$  passe de 2,34 à 2,41 au quatrième cycle pour diminuer et atteindre la valeur de 2,33.

A la température d'essai de 120°C (figure IV.1.d), la courbe donnant la constante diélectrique en fonction de la durée de vieillissement présente une variation similaire que celle obtenue à la température de 100°C ; cependant, avec des valeurs inférieures,  $\varepsilon_r$  diminue (avec un taux de variation de 6,61 %) de 2,42 à 2,26. Sous la même température d'essai, la permittivité présente un comportement constant en gardant une valeur de 2,28 en fonction du nombre de cycles de vieillissement (figure IV.2.d).



**Figure IV. 3.** Permittivité relative en fonction du temps de vieillissement continu à la température de 100°C.



**Figure IV. 4.** Permittivité relative en fonction du temps de vieillissement cyclique à la température de 100°C.
A la température de vieillissement de 100°C, la permittivité mesurée à la température ambiante, présente une évolution constante avec une valeur de 2,51 au cours du temps de vieillissement (figure IV.3.a). Le même comportement de  $\varepsilon_r$  a été remarqué sous les mêmes conditions d'essai en conservant une valeur de 2,57 dans le mode cyclique de vieillissement (figure IV.4.a).

Sur la figure IV.3.b, la permittivité obtenue à la température d'essai de 80°C augmente peu durant les premières heures de vieillissement ; elle passe de 2,40 à 2,44 et diminue ensuite légèrement pour se stabiliser autour de 2,41 à partir de 1200 heures. Sous les mêmes conditions expérimentales, la constante diélectrique montre un comportement contraire durant les premiers cycles de vieillissement (figure IV.4.b). En effet,  $\varepsilon_r$  diminue à partir de 2,53 jusqu' à 2,46 ensuite augmente pour conserver une valeur de 2,48.

La constante diélectrique, mesurée à la température d'essai de 100°C, représentée sur la figure IV.3.c, présente quelques variations en fonction du temps de vieillissement. En effet, elle diminue de 2,37 à 2,34 pour ensuite augmenter et se stabiliser autour de 2,37. Sous le vieillissement cyclique, la permittivité marque également des variations en fonction du nombre de cycles ; elle diminue de 2,5 à 2,41 pour augmenter à partir du cinquième cycle en atteignant la valeur 2,47 et diminue à nouveau pour atteindre une valeur de 2,36 au vingtième cycle (figure IV.4.c).

Des variations de la permittivité du PRC au cours de vieillissement sous la température d'essai de 120°C (figure IV.3.d) ont été obtenues avec des valeurs inférieures à celles mesurées sous la température de 100°C ; elle passe de 2,33 à 2,24 pour augmenter à partir de 400 heures d'exposition thermique et atteindre une valeur de 2,35 après 1400 heures et diminuer à nouveau en conservant une valeur de 2,30 jusqu'à la fin de la durée de vieillissement. Sous les mêmes conditions de mesure, la permittivité subit également des variations en fonction du nombre de cycles : elle augmente de 2,29 à 2,39 puis diminue à partir du quatrième cycle et se stabilise autour de 2,32 et diminue à nouveau en atteignant la valeur 2,26 au neuvième cycle à partir duquel elle augmente et conserve une valeur autour de 2,29 (figure IV.4.d).



**Figure IV. 5.** Permittivité relative en fonction du temps de vieillissement continu à la température de 120°C.



**Figure IV. 6.** Permittivité relative en fonction du temps de vieillissement cyclique à la température de 120°C.

Sous le vieillissement thermique à la température de 120°C, la constante diélectrique mesurée à la température ambiante reste constante en fonction de la durée de vieillissement et a pour valeur 2,55 (figure IV.5.a). Dans les mêmes conditions d'essais, la constante diélectrique reste également constante avec une valeur de 2,54 durant les premiers cycles de vieillissement ensuite diminue à 2,46 au huitième cycle à partir duquel la permittivité augmente pour se stabiliser autour de la valeur 2,50 (figure IV. 6.a).

La figure IV.5.b montre que la permittivité mesurée à la température de 80°C augmente de 2,45 pour atteindre la valeur 2,51 après 1000 heures et se stabilise ensuite autour de la valeur 2,50 jusqu'à 2000 heures. A la même température d'essai (figure IV.6.b), la constante diélectrique présente de légères variations en fonction du nombre de cycles de vieillissement et garde une valeur pratiquement constante autour de 2,4.

A la température d'essai de 100°C, nous avons enregistré une faible augmentation de la constante diélectrique en fonction de la durée d'exposition à la chaleur et ce, de 2,42 à 2,46 après 1000 heures soit un taux de variation de 1,65 % (figure IV.5.c). Sous le vieillissement cyclique, la constante diélectrique subit des variations perceptibles (figure IV.6.c). En effet, elle passe de 2,36 à 2,43 au cinquième cycle ensuite elle diminue à 2,38 pour augmenter à nouveau à la même valeur et diminuer encore une fois pour se stabiliser à partir du dixième cycle autour de la valeur 2,34 en marquant un minimum 2,31 aux dix-huitième et dix-neuvième cycle.

La constante diélectrique mesurée à la température d'essai de 120°C (figure IV.5.d) offre un comportement similaire à celui obtenu à la température de 100°C en fonction de la durée de chauffage en mode continu. Cependant, avec des valeurs inférieures, elle augmente de 2,36 pour conserver une valeur pratiquement constante autour de 2,43 à partir de 1000 heures de vieillissement, soit un taux de variation de 2,96 %. Dans le mode cyclique de vieillissement, la permittivité obtenue à la température de 120°C (figure IV.6.d) présente sensiblement le même comportement que celui observé à la température de 100°C néanmoins, avec des valeurs inférieures.



**Figure IV. 7.** Permittivité relative en fonction du temps de vieillissement continu à la température de 140°C.



**Figure IV. 8.** Permittivité relative en fonction du temps de vieillissement cyclique à la température de 140°C.

Dans le mode continu de vieillissement sous la température de 140°C, la permittivité relative mesurée à la température ambiante conserve une valeur sensiblement constante autour de 2,60 pour marquer une légère augmentation à 2,64 après 1200 heures. Passé ce temps, la permittivité diminue pour se stabiliser autour 2,53 jusqu'à la fin de la durée de vieillissement (figure IV.7.a). Sous les mêmes conditions expérimentales, la constante diélectrique présente trois paliers en fonction du nombre de cycles (figure IV.8.a). En effet, elle conserve une valeur constante de 2,62 jusqu'au septième cycle à partir duquel elle passe à 2,56 et reste constante pour diminuer de nouveau à 2,53 à partir du dix-septième cycle.

Des variations de la constante diélectrique mesurée à la température de 80°C ont été enregistrées en fonction de la durée de vieillissement continu ; elle passe de 2,44 à 2,5 après 400 heures ensuite elle diminue pour marquer un palier autour de 2,49 jusqu'à 1200 heures de vieillissement où elle diminue à nouveau pour garder une valeur sensiblement constante autour de 2,44 (figure IV.7.b). Une similitude de comportement (présence des trois paliers) de la constante diélectrique mesurée à la température de 80°C, a été notée comparativement à celle obtenue à la température ambiante en fonction du nombre de cycles de chauffage et de refroidissement. Cependant, avec des valeurs plus faibles, la caractéristique montrant l'évolution de  $\varepsilon_r$  en fonction du temps présente un palier de 2,51 jusqu'au sixième cycle pour diminuer et passer au palier de 2,47 et ce, à partir du huitième cycle jusqu'au dix-septième cycle à partir duquel elle passe à nouveau au palier de 2,43 laquelle valeur reste conservée jusqu'à la fin de la durée de vieillissement (figure IV. 8.b).

A la température d'essai de 100°C (figure IV.7.c), la constante diélectrique évolue de 2,40 à 2,45 ensuite elle diminue pour marquer un palier autour de 2,42 à partir de 600 heures jusqu'à 1200 heures. Passée cette durée de vieillissement, la permittivité présente un minimum de 2,37 à 1600 heures de vieillissement pour conserver une valeur pratiquement constante autour 2,40. Sous les mêmes conditions de l'expérience (figure IV.8.c), la permittivité semble avoir le même comportement que celui noté à la température d'essai de 80°C en fonction du nombre de cycles de vieillissement mais avec des valeurs inférieures.

La figure IV.7. d, montre que la permittivité relative mesurée à la température de 120°C reste sensiblement constante en fonction du temps de vieillissement autour de la valeur 2,35. Pour les mêmes conditions de mesures considérées, la courbe de la constante diélectrique présente des variations en fonction du nombre de cycles. En effet, elle passe de 2,43 à 2,49 pour montrer un minimum de 2,39 au septième cycle à partir duquel elle croît faiblement en atteignant une valeur de 2,41 pour ensuite diminuer à 2,39 au vingtième cycle (figure IV. 8.d).

Sur le plan qualitatif, ces résultats expérimentaux confirment ceux obtenus sur des plaques du même matériau ayant subi un vieillissement thermique étuvé de longue durée de 5000 heures [6].

Pour les deux modes de vieillissement investis et pour une température de vieillissement donnée, nous avons obtenu une faible diminution de la constante diélectrique en fonction de la température d'essai explorée : 20, 80, 100 et 120°C. Nous avons également noté que les valeurs de la permittivité mesurées sous le mode continu de vieillissement sont supérieures à celles obtenues sous le mode cyclique [1]. L'évolution de la constante diélectrique en fonction de la température d'essai et de la température de vieillissement comme paramètre sera donnée ultérieurement (Voir § IV.1.4).

Contrairement à l'effet de la température, la tension d'essai semble n'avoir aucune influence sur la variation de la permittivité relative [1,7-9] comme le montrent les figures IV.1 à IV.8. Ce résultat, nous l'avons mis en en évidence en mesurant la constante diélectrique sur une gamme de tension variant de 5 kV à 35 kV en prenant la température d'essai comme paramètre et ce, pour les différentes températures de vieillissement (figures IV.9.a à IV.9.d).

A l'issue de cette analyse, nous pensons que malgré les variations de la permittivité relative enregistrées durant le vieillissement thermique sous certaines conditions d'essai, la qualité d'isolation des câbles 18/30 kV en PRC du point de vue permittivité relative n'est pas affectée par le vieillissement. En effet, les valeurs obtenues sont restées conservées autour de la gamme 2,2 - 2,5 caractérisant un câble PRC vierge (non vieilli).



Figure IV. 9. Permittivité relative en fonction de la tension d'essai après vieillissement continu.

## IV.1.2. Indice de pertes diélectriques en fonction du temps de vieillissement

L'indice de pertes diélectriques ( $\varepsilon_r tg\delta$ ) est le produit de la permittivité relative  $\varepsilon_r$  par le facteur de dissipation diélectrique tg $\delta$ . L'utilisation de cette propriété présente l'avantage de réunir en un seul terme deux particularités du matériau, ainsi elle nous renseigne sur la puissance perdue dans le matériau polymère permettant de prévenir le risque de l'emballement thermique. Le facteur de pertes diélectriques tg $\delta$  a été mesuré en même temps et dans les mêmes conditions que la permittivité relative.

Nous avons étudié l'évolution de l'indice de pertes diélectriques en fonction de la durée de vieillissement sous les deux modes : continu et cyclique et ce, pour quatre températures différentes variant de 80°C à 140°C choisies conformément aux recommandations de la CEI 216-1 [10].

Aux figures IV.10.a,b,c,d à IV.17.a,b,c,d, nous avons porté les valeurs de l'indice de pertes diélectriques déterminées en fonction de la durée d'exposition à la chaleur aux températures de vieillissement appliquées et ce, pour les mêmes températures et tensions d'essai explorées dans la mesure de la permittivité relative.

Pour une température de vieillissement donnée, l'indice de pertes diélectriques présente des variations en fonction du temps de vieillissement caractérisées par la présence de pics de relaxations dus à des mouvements (rotations, vibrations, translations) de segments plus ou moins longs de chaînes principales ou latérales [11]. Les valeurs obtenues sous les deux modes précités ont le même sens de variations du point de vue qualitatif avec le temps de vieillissement et ce, pour les différents paliers de tension et à température d'essai constante.

Du point de vue quantitatif, l'indice de pertes diélectriques est d'autant plus important que la valeur de la tension est plus élevée. Le même comportement diélectrique a été obtenu par D. Andjelkovic et *al.* [3] en pratiquant des essais accélérés au laboratoire sur des câbles 6 kV isolés au PRC. Cette élévation des pertes diélectriques est expliquée par l'énergie dissipée par les décharges partielles [12]. A titre indicatif, sous le mode continu de vieillissement à la température de 80°C et hormis les pics enregistrés sur les courbes de la figure IV.10.b, la valeur de l'indice de pertes obtenue sous la température d'essai de 80°C oscille autour de  $4x10^{-4}$ ,  $12x10^{-4}$ ,  $26x10^{-4}$  et  $32x10^{-4}$  respectivement sous les tensions d'essai : 9, 18, 27 et 36 kV.



**Figure IV.10.** Variation de l'indice de pertes diélectriques en fonction du temps de vieillissement continu à la température de 80°C.





**Figure IV.11.** Variation de l'indice de pertes diélectriques en fonction du temps de vieillissement cyclique à la température de 80°C.



**Figure IV.12.** Variation de l'indice de pertes diélectriques en fonction du temps de vieillissement continu à la température de 100°C.



**Figure IV.13.** Variation de l'indice de pertes diélectriques en fonction du temps de vieillissement cyclique à la température de 100°C.



**Figure IV.14.** Variation de l'indice de pertes diélectriques en fonction du temps de vieillissement continu à la température de 120°C.



**Figure IV.15.** Variation de l'indice de pertes diélectriques en fonction du temps de vieillissement cyclique à la température de 120°C.



**Figure IV.16.** Variation de l'indice de pertes diélectriques en fonction du temps de vieillissement continu à la température de 140°C.



**Figure IV.17.** Variation de l'indice de pertes diélectriques en fonction du temps de vieillissement cyclique à la température de 140°C.

Dans le mode cyclique de vieillissement et sous les mêmes conditions d'essai, l'indice de pertes oscille autour de  $3x10^{-4}$ ,  $10x10^{-4}$ ,  $20x10^{-4}$  et  $26x10^{-4}$  respectivement sous les tensions d'essai : 9, 18, 27 et 36 kV comme l'illustre la figure IV.11.b. A la température de vieillissement de 140°C, l'indice de pertes représenté à la figure IV.16.b ne fait que croître en fonction du temps de vieillissement et ce, après 600 heures de vieillissement pour diminuer à partir de 1400 heures après avoir atteint les maximums de  $82x10^{-4}$ ,  $100x10^{-4}$ , $141x10^{-4}$  et  $144x10^{-4}$  respectivement sous les tensions d'essai : 9, 18, 27 et 36 kV. Sous le vieillissement cyclique et à la température d'essai de  $80^{\circ}$ C, l'indice de pertes augmente pour se stabiliser autour de  $8x10^{-4}$  à partir du neuvième cycle sous la tension d'essai de 9 kV et il oscille autour de  $22x10^{-4}$ ,  $44x10^{-4}$  et  $48x10^{-4}$  respectivement sous les tensions d'essai : 18, 27 et 36 kV (figure IV.17.b).

Nous avons également remarqué un accroissement de l'indice de pertes diélectriques en fonction de la température d'essai. Nous pensons que cette augmentation serait due aux faits qu'aux températures élevées, les segments de chaînes macromoléculaires sont plus mouvementés qu'aux basses températures engendrant ainsi davantage de pertes diélectriques [13].

La température de vieillissement a une influence considérable sur l'indice de pertes diélectriques [7,9,14,15]. En effet, ce dernier augmente avec la température de vieillissement ce qui est en conformité avec la théorie. L'augmentation de l'indice de pertes trouve son explication dans la diminution relative de la viscosité du polymère et l'augmentation de la mobilité moléculaire qui est d'autant plus importante que la température est plus élevée et d'autant plus faible que l'histoire thermique en fin de mise en œuvre aura permis au matériau d'atteindre l'état de stabilité [16]. Une corrélation assez étroite existe entre l'accroissement du facteur de pertes diélectriques et la conductivité du matériau en fonction de la durée de vieillissement notamment sous les contraintes les plus élevées. Selon une étude sur les modifications physico-chimiques et structurales occasionnées par le vieillissement thermique des câbles en PRC effectuée par G. C. Montanari [17], il a été montré que la conductivité électrique du matériau augmente avec le temps de vieillissement et atteint une valeur trois fois plus grande que celle mesurée initialement et ce, après 20000 heures de vieillissement à la température de 110°C. L'accroissement des valeurs de la conductivité et du facteur de pertes diélectriques en fonction de la durée d'exposition à la chaleur se traduisent généralement par l'affaiblissement de la rigidité diélectrique du polymère. En effet, D. Andjelkovic et al. [3] et G. C. Montanari [17] ont constaté que la rigidité diélectrique des câbles en PRC vieillis thermiquement au laboratoire diminue avec le temps en évoluant en sens inverse de la conductivité.

Pour évaluer l'état de dégradation de l'isolation du câble étudié du point de vue des pertes diélectriques, nous nous sommes intéressés au contrôle de la qualité du câble 18/30 kV isolé au PRC fabriqué par la câblerie ENICA.Biskra en confrontant les valeurs du facteur de pertes (déduites de celles de l'indice de pertes) obtenues à celles données par la norme CEI 502 [18]. Cette dernière stipule qu'à la température ambiante, la valeur maximale du facteur de pertes diélectriques doit rester inférieure à  $40 \times 10^{-4}$  sous la tension spécifiée U<sub>0</sub>= 18 kV et que la valeur de sa variation maximale entre 0,5 U<sub>0</sub> et 2 U<sub>0</sub> ne doit pas dépasser  $20 \times 10^{-4}$  (Voir Annexe A.2). Pour ce faire, nous avons rassemblé les résultats du facteur de pertes diélectriques dans le tableau IV.1.

**Tableau IV.1.** Valeurs de tgδ avant et après vieillissement thermique continu et cyclique selon la norme CEI 502.

$T_V = 80^{\circ}C$	Avant	Après 2000 heures de	Après 20 cycles de
	vieillissement	vieillissement thermique	vieillissement thermique
tgδ (18 kV) à 20°C			
	< 10 <sup>-4</sup>	$1,6x10^{-4}$	4,66x10 <sup>-4</sup>
Δtgδ (9 kV- 36 kV)			
à 20°C	6,61x10 <sup>-4</sup>	9,23x10 <sup>-4</sup>	8,95x10 <sup>-4</sup>
$T_V = 100^{\circ}C$			
tgδ (18 kV) à 20°C			
	< 10 <sup>-4</sup>	$4,18x10^{-4}$	$4,86 \times 10^{-4}$
Δtgδ (9 kV- 36 kV)			
à 20°C	6,61x10 <sup>-4</sup>	9,56x10 <sup>-4</sup>	19,45x10 <sup>-4</sup>
$T_{V} = 120^{\circ}C$			
tgδ (18 kV) à 20°C			
	<10 <sup>-4</sup>	$6,25 \times 10^{-4}$	17,85x10 <sup>-4</sup>
Δtgδ (9 kV- 36 kV)			
à 20°C	6,61x10 <sup>-4</sup>	12,89x10 <sup>-4</sup>	29,25x10 <sup>-4</sup>
$T_{V} = 140^{\circ}C$			
tgδ (18 kV) à 20°C			
	< 10 <sup>-4</sup>	29,5x10 <sup>-4</sup>	8,3x10 <sup>-4</sup>
Δtgδ (9 kV- 36 kV)			
à 20°C	6,61x10 <sup>-4</sup>	21x10 <sup>-4</sup>	20,55x10 <sup>-4</sup>

L'analyse de l'ensemble des résultats de conformité à la norme CEI 502 du point de vue de pertes diélectriques, permet d'avancer que les câbles en PRC produits par la câblerie ENICA.Biskra répondent aux normes en vigueur et que les valeurs de tg $\delta$  relativement élevées, enregistrées à la températures de vieillissement de 140°C sous les deux modes investies, restent dans les limites tolérées malgré les légers dépassements. Cependant, nous avons constaté une violation de la norme CEI 502 à la température de vieillissement de 120°C sous le mode cyclique.

## IV.1.3. Variation du facteur de pertes diélectriques en fonction de la tension

Le facteur de pertes diélectriques ( $tg\delta$ ) représente l'énergie perdue, transformée en chaleur dans le diélectrique. Il constitue une propriété déterminante de la qualité d'isolation des matériaux utilisés dans le domaine de l'électrotechnique en l'occurrence les câbles de haute tension.

Pour connaître les performances d'ordre pratique des câbles en PRC 18/30 kV et leur comportement en régime de service normal et en régime transitoire, nous avons étudié l'évolution du facteur de dissipation diélectrique en fonction de la tension d'essai pour différentes températures de vieillissement et d'essai.

Pour ce faire, nous avons mesuré la tangente de l'angle de pertes diélectriques tg $\delta$  en fonction de la tension sur une gamme variant de 5 kV à 35 kV et ce, avant et après vieillissement thermique sous les deux modes cités précédemment. Les températures d'essai explorées sont : 20, 80, 100 et 120°C. La variation de la tension d'essai s'effectue en faisant varier le secondaire du régulateur de tension qui se traduit par une variation de la tension du transformateur d'essai.

Sur les figures IV.18.a et IV.18.b, nous représentons respectivement pour une échelle linéaire et une échelle semi-logarithmique les valeurs du facteur de pertes diélectriques du câble PRC neuf (n'ayant pas subi un vieillissement thermique) en fonction de la tension d'essai.

Pour les quatre températures d'essais explorées, le facteur de pertes diélectriques augmente avec la tension. Cette augmentation est perceptible à partir d'un niveau de tension de 15 kV. Toutefois, le facteur de pertes diélectriques mesuré à la température ambiante et à la tension spécifiée  $U_0 = 18$  kV vaut  $1,3x10^{-4}$  et sa valeur entre 0,5  $U_0$  et 2  $U_0$  est  $5,8x10^{-4}$ . Ces résultats sont conformes aux recommandations de la CEI 502 [18] (Voir Annexe A.2).



**Figure IV.18.** Variation du facteur de pertes diélectriques en fonction de la tension d'essai avant vieillissement.

L'évolution du facteur de pertes diélectriques en fonction de la tension d'essai après le vieillissement sous les deux modes appliqués est montrée sur les figures IV.19, IV.20, IV.21 et IV.22 également pour deux échelles différentes linéaire et semi-logarithmique.

Après vieillissement, le facteur de pertes diélectriques varie avec la tension d'une façon similaire à celle obtenue avant vieillissement [1,8,15,18,19]. En effet, tgo augmente brusquement à partir d'un niveau de tension de 15 kV qui serait le seuil d'ionisation, au-delà duquel des décharges partielles prennent naissance dans le matériau rendant les déperditions diélectriques importantes [20]. En effet, il semble qu'il existe un lien entre la tension seuil d'augmentation du facteur de pertes diélectriques et l'apparition des décharges partielles dans les sites vulnérables internes se produisant de l'isolation du câble (vacuoles, impuretés etc.) [21]. Ce comportement (augmentation des pertes diélectriques à partir d'un seuil de tension) a déjà été observé dans des travaux antérieures sur différents types de polymères [22-24]. Il est à noter que les valeurs du facteur de dissipation diélectrique sont plus considérables sur les câbles vieillis que celles mesurées sur l'échantillon témoin (câble neuf).



**Figure IV.19.** Variation du facteur de pertes diélectriques en fonction de la tension après vieillissement continu (Échelle linéaire).



**Figure IV.20.** Variation du facteur de pertes diélectriques en fonction de la tension après vieillissement continu (Échelle semi-logarithmique).



**Figure IV.21.** Variation du facteur de pertes diélectriques en fonction de la tension après vieillissement cyclique (Échelle linéaire).



**Figure IV.22.** Variation du facteur de pertes diélectriques en fonction de la tension après vieillissement cyclique (Échelle semi-logarithmique).

L'exploitation de la caractéristique tgo en fonction de la tension revêt un intérêt grandissant du point de vue technique industrielle dans la mesure où cela pourrait nous renseigner sur la qualité de fabrication des câbles HT et la limite de leur utilisation en service. En effet, nous recommandons d'utiliser les câbles isolés au PRC fabriqué par l'ENICA.Biskra dans la gamme de tension spécifiée 15 kV - 18 kV soit 26 kV - 30 kV en service.

Pour les deux modes de vieillissement étudiés et sous les températures de  $80^{\circ}$ C et  $100^{\circ}$ C, le comportement de tg $\delta$  est pratiquement identique – tg $\delta$  présente une évolution similaire - du point de vue de la loi de variation et de l'ordre de grandeur. Aux températures de vieillissement de  $120^{\circ}$ C et  $140^{\circ}$ C, le facteur de pertes diélectriques atteint des valeurs plus ou moins importantes notamment sous le mode de vieillissement continu.

Le facteur de dissipation diélectrique est d'autant plus important que la température de vieillissement est élevée. Ceci serait attribué à l'augmentation de la mobilité moléculaire et la diminution de la viscosité avec l'accroissement de la température. Il est généralement admis que le facteur de pertes diélectriques mesuré dans les polymères solides est dû au déplacement des porteurs de charges et à la contribution de la charge d'espace interfaciale. Dans les polymères semi-cristallins en l'occurrence le PRC, des pertes ioniques dues aux rémanents des traces de catalyseurs, ou d'autres impuretés ioniques pourraient avoir lieu à côté des pertes électroniques se manifestant dans les régions cristallines et amorphes [21,22]. Une explication basée sur la théorie et les mécanismes de conduction dans les isolants polymères sera donnée ultérieurement (Voir § IV.1.5) pour rendre compte de l'augmentation du facteur de pertes diélectriques en fonction de la température.

L'accroissement du facteur de dissipation diélectrique après vieillissement serait lié aux mécanismes de dégradation thermique (réactions de décomposition) accompagnant le vieillissement du PRC [12]. En effet, sous l'action prolongée de la chaleur, le vieillissement thermique peut conduire à l'évaporation d'adjuvants et au dégagement de produits volatils [16,25]. Dans une étude [24] basée sur une méthode analytique de caractérisation par chromatographie en phase liquide à haute performance (HPLC) pratiquée sur des échantillons en PRC (plaques obtenues à partir de granulés par moulages 30 min, 180°C, 17 MPa) neufs, ayant subi un recuit (90°C / 72 h) et vieillies thermiquement (135°C / 672 h), il a été montré une décroissance des teneurs des produits de décomposition du péroxyde et de l'antioxydant. Les teneurs en péroxyde de dicumyle sont passés de 1,69 % (échantillons en granulés) à quelques traces après réticulation avec une présence de 0,86 % d'alcool cumylique et 0,40 % d'acétophénone jusqu'à la disparition complète des produits de décomposition du péroxyde après le recuit et le vieillissement thermique. Pour ce qui est de l'antioxydant (Santonox), aucune trace n'a été décelée par cette technique d'analyse après avoir été mesuré à 0,16 % sur des échantillons sous forme de granulés. Des résultats pratiquement similaires ont été obtenus

sur des câbles MT 20 kV en PRC vieillis en service depuis plus de 10 ans par la même équipe de recherche [24].

Par ailleurs, dès que l'énergie thermique devient suffisante, des ruptures de chaînes (au niveau des liaisons covalentes C-C) et des dépolymérisations vont se produire [17]. Pour le polyéthylène réticulé chimiquement, on assiste à une dégradation thermo-oxydante caractérisée par la formation de groupes polaires tels que : cétone, alcool, aldéhyde et acide. Les coupures de chaînes entraînent la diminution de la viscosité du polymère et les groupes polaires favorisent la mobilité des porteurs de charges [25].

Le caractère organique du PRC sous l'action de la contrainte thermique fait qu'il est le siège de processus radicalaires (faisant intervenir des radicaux libres). Les radicaux libres ont la propriété de réagir très rapidement avec l'oxygène. L'oxydation thermique concerne de nombreux polymères, le cas des polyoléfines dont fait partie le PRC est particulièrement important. La dégradation oxydante représente la principale limitation à l'utilisation à long terme du PRC. En effet, l'oxydation joue un rôle négatif dans la détérioration du facteur de pertes diélectriques. Les réactions d'oxydation ont pour effet d'introduire des dipôles électriques sur les macromolécules provoquant ainsi une augmentation du facteur de pertes et une diminution de la rigidité diélectrique du matériau [16].

Selon l'étude effectuée par W. D. Schupp et *al.* [24], la disparition de l'antioxydant durant le vieillissement thermique du PRC peut être due au fait qu'il se greffe sur les chaînes du polymère, comme le suppose plusieurs auteurs [26,27] ou à une oxydation suivie d'une oligomérisation donnant des produits insolubles similaires à ceux trouvés par H. Pospisil dans son étude de l'oxydation d'un isomère du Santonox [28].

## IV.1.4. Variation de la constante diélectrique en fonction de la température

L'effet des conditions du vieillissement thermique sur la variation de la constante diélectrique  $\varepsilon_r$  (partie réelle de la permittivité complexe) en fonction de la température a également fait l'objet de notre investigation. L'étude de la variation de la permittivité avec la température permet de suivre le comportement diélectrique du matériau. En outre, elle constitue un complément précieux aux observations des propriétés mécaniques en nous fournissant des renseignements sur les mécanismes de déformation en l'occurrence les grandeurs viscoélastiques comme le module de stockage (G<sup>'</sup>), partie réelle de du module de cisaillement complexe G<sup>\*</sup> (appelé aussi composante visqueuse).

Les essais ont été effectués avant et après vieillissement thermique des câbles et ce, à la tension spécifiée  $U_0$  soit 18 kV, 50 Hz et sur une gamme de température variant de 20°C à 140°C. La mesure de la température du câble s'opère à l'aide d'une sonde (thermocouple) enfoncée dans la couche isolante (PRC) du câble et reliée directement au régulateur de température.

Les résultats de mesure de la permittivité en fonction de la température d'essai pour différentes températures de vieillissement pour les deux modes sont présentés aux figures IV.23 et IV.24. A titre comparatif, en prenant la température de vieillissement comme paramètre, les résultats ont été également exploités et illustrés sur les figures IV.25 et IV.26.

Pour les deux modes de vieillissement thermique, la permittivité présente pratiquement la même variation du point de vue qualitatif [1]. En effet, en nous basant sur les résultats expérimentaux, nous remarquons que  $\varepsilon_r$  décroît faiblement à mesure que la température d'essai augmente (figures IV.23 et IV.24). A côté de l'analyse qualitative que nous avons établie, nous suggérons une analyse quantitative pour une meilleure exploitation des résultats de la constante diélectrique en fonction de la température.

Après le vieillissement continu sous les températures de 80, 100, 120 et 140°C, la permittivité évolue en sens inverse avec la température en présentant des taux de variations respectivement de 12 %, 10,75 %, 8 % et 8,23 %. Sous le vieillissement cyclique, les taux de variations estimés pour les mêmes températures de vieillissement sont respectivement : 10,54 %, 6,66 %, 9,4 % et 5 %. Notons que les valeurs de  $\varepsilon_r$  obtenues après vieillissement thermique sous le mode cyclique sont supérieures à celles obtenues avant vieillissement. Ce résultat montre l'effet du vieillissement thermique sur le comportement diélectrique du PRC constituant l'enveloppe isolante du câble PRC 18/30 kV essayé. Un comportement contraire a été obtenu sous le vieillissement continu [8].



**Figure IV. 23.** Variation de la constante diélectrique en fonction de la température avant et après vieillissement continu.



**Figure IV.24.** Variation de la constante diélectrique en fonction de la température avant et après vieillissement cyclique.



**Figure IV.25.** Variations de  $\varepsilon_r$  en fonction de la température avant et après 2000 heures.

**Figure IV.26.** Variations de  $\varepsilon_r$  en fonction de la température avant et après 20 cycles.

Les résultats obtenus sont cohérents avec les données des travaux d'autres chercheurs [11,22,29-31]. Une similitude de comportement de  $\varepsilon_r$  en fonction de la température d'essai a été obtenue sur des plaques de PRC vieillis thermiquement pendant 5000 heures [29,30]. Le même comportement diélectrique en fonction de la température de la permittivité relative a été observé par H. St-Onge et *al.* sur des échantillons de PRC en fonction de la température [22]. Un changement assez brusque a été enregistré sur l'allure de  $\varepsilon_r$  à la température de 90°C qui correspond à la température assignée maximale de l'âme conductrice du câble en service normal. Cette diminution rapide de la permittivité devient plus prononcée aux alentours de la température de 110°C qui serait la température de fusion cristalline du PRC. Ceci est imputable au ramollissement du matériau polymère à la température de fusion cristalline selon les travaux de H. St-Onge et *al.* [22].

La décroissance graduelle de la constante diélectrique en fonction de la température comme le montrent les figures IV.25 et IV.26 pour les différentes conditions de vieillissement thermique serait principalement due à la réduction de la densité du matériau qui subit des modifications à l'échelle moléculaire (resserrement du réseau moléculaire) notamment aux températures élevées, entraînant par conséquent des changements au niveau des propriétés physico-chimiques [22]. La variation du temps de relaxation caractérisant les oscillations des dipôles pourrait expliquer le comportement de  $\varepsilon_r$  en fonction de la température. Le temps de relaxation dépend étroitement de la température [4].

Dans une investigation effectuée par E. L. Leguenza et *al.* [32] sur les propriétés viscoélastiques du PRC prélevé sur des câbles vieillis en service pendant 25 ans et au laboratoire durant 1000 heures, il a été montré une décroissance du module de stockage G' ( $\varepsilon_r$  par analogie) en fonction de la température sur une large gamme variant de -150°C à 110°C. Ce résultat confirme l'existence d'une étroite corrélation entre le comportement viscoélastique et diélectrique du matériau étudié. Les relaxations diélectriques peuvent être comparées aux relaxations mécaniques. En effet, l'examen des caractéristiques diélectriques pratiquées sur des polyoléfines a révélé un parallélisme de comportement mécanique et électrique de ces polymères, ce qui implique nécessairement la mise en cause des mêmes mécanismes moléculaires [11]. Ce résultat présente un grand intérêt d'un point de vue pratique, dans la mesure où il pourrait dans certains cas permettre de substituer un contrôle électrique à un contrôle mécanique des matériaux.

Les propriétés viscoélastiques sont sensibles aux changements survenant durant le vieillissement. Les variations de G' en fonction de la température mesurées par l'analyse thermique mécanique dynamique (DMTA) sont dues aux différents processus se produisant dans le PRC : réticulation par un mécanisme d'oxydation et variation de la cristallinité du polymère [33-39].

## IV.1.5. Variation du facteur de pertes diélectriques en fonction de la <u>température</u>

Les pertes diélectriques constituent un sérieux point noir des isolants solides car elles affectent directement les performances des câbles en limitant leur capacité de transport, augmentant ainsi le coût d'exploitation d'énergie électrique.

Nous nous sommes également intéressés à l'étude de l'évolution du facteur de dissipation diélectrique tg $\delta$  en fonction de la température et ce, sous les deux modes de vieillissement thermique continu et cyclique. Pour ce faire, nous avons mesuré le facteur de pertes diélectriques du PRC sur une gamme de température d'essai variant de 20°C à 140°C à la tension spécifiée U<sub>0</sub> soit 18 kV, 50 Hz et ce, avant et après 2000 heures de vieillissement continu et 20 cycles de chauffage thermique sous les quatre températures de vieillissement précitées.

Nous constatons pour les deux modes de vieillissement, une augmentation rapide du facteur de dissipation diélectrique à partir d'une certaine valeur de température (90°C) qui est la température d'opération de l'âme conductrice du câble en service normal (figures IV.27 et IV.28). Une augmentation appréciable de la tangente de l'angle de pertes

diélectriques est perceptible sur les spectres des figures de tg $\delta$  à l'approche de la température de 110°C qui est la température de fusion cristalline du PRC. Des résultats semblables ont été obtenus par d'autres auteurs sur des plaques du même matériau (PRC) (obtenues par moulages des granules de PEbd 4201) ayant subi un vieillissement thermique continu de 5000 heures [29,30]. H. St-Onge et al. ont obtenu la même réponse diélectrique sur des échantillons de PRC en fonction de la température sur une gamme variant de 20 à 150°C [22]. Un palier minimum entre 60 et 90°C a été observé par J. C. Chan et al. [40] sur l'allure du facteur de pertes, en fonction de la température, mesuré sur des câbles 138 kV en PRC vieillis thermiquement.

L'ensemble des résultats obtenus du facteur de pertes diélectriques est exploité et représenté sur les figures IV.29 et IV.30. Nous avons noté pour les deux modes de vieillissement, une similitude de comportement de tg $\delta$  du point de vue qualitatif et quantitatif sous les températures de vieillissement de 80, 100 et 120°C. Des valeurs importantes de tg $\delta$  avoisinant 40x10<sup>-4</sup> ont été enregistrées sous le mode continu à la température de 140°C, qui restent toutefois inférieures à celles exigées par la norme CEI 502 [18]. Par contre, sous le mode cyclique, la plus haute valeur que tg $\delta$  avait atteinte (11x10<sup>-4</sup>) reste très faible pour provoquer l'emballement thermique du câble.

Après le vieillissement, le facteur de pertes diélectriques présente des valeurs nettement supérieures à celles obtenues avant le vieillissement. Cet accroissement des valeurs de tg $\delta$  en fonction de la température de vieillissement serait dû à la diminution de la viscosité du matériau dans le temps. Ceci a comme conséquence une grande mobilité des porteurs de charges conduisant à une augmentation du facteur de dissipation diélectrique [16,17]. En effet, le comportement des polymères aux contraintes élevées de température est caractérisé par les phénomènes de conduction; des charges électriques peuvent être injectées du métal (l'âme conductrice dans les câbles) vers le matériau isolant, alors que d'autres sont susceptibles de prendre naissance par dissociation ionique et s'ajoutent aux charges déjà présentes dans le matériau pour former la charge d'espace. Dans les polymères, de nombreux chercheurs insistent sur le rôle joué par les ions résultant de la dissociation d'impuretés et des produits de décomposition des péroxydes qui ont été introduits dans le matériau lors des opérations de fabrication et de mise en œuvre [30]. Dans le cas du polyéthylène réticulé chimiquement, la décomposition du péroxyde de dicumyle donne naissance à un alcool cumylique qui à son tour formera d'autres produits résiduels;  $\alpha$ -méthyl-styrène, acétophénone, eau, éthane et méthane.

Le pic observé sur les allures de tgδ en fonction de la température dans la gamme de 110 à 140°C dénote probablement le pic des pertes dues aux charges d'espace [21]. Selon H. St- Onge et *al.*, l'amplitude importante de tgδ enregistrée sur les courbes laisse présumer une conduction de type électronique et serait probablement due aux pertes dipolaires. Ces dernières deviennent considérables suite à la relaxation des unités  $CH_2$  du PRC dans les régions cristallines et les produits de décomposition dus à l'oxydation tel que les groupes carbonylés [22].

Généralement, les variations de tg $\delta$  en fonction de la température sont caractérisées par la présence de pics dits de relaxation dus à des mouvements (rotation, vibration, translation) de segments de chaînes du matériau. Pour le PRC, les relaxations des dipôles perceptibles dans les zones cristallines caractérisent le pic  $\alpha$  qui se manifeste aux hautes températures [21]. Pour les matériaux polyoléfines et la plupart des polymères semi-cristallins dont fait partie le PRC, on note en général, la présence de quatre pics de relaxation sur les courbes représentatives de tg $\delta$  en fonction de la température. Ces pics sont appelés  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  et  $\delta$  par température décroissante.

L'influence considérable de la température sur les valeurs de tgô laisse présumer une dégradation thermique de type oxydante. Ceci a été confirmé par des analyses physicochimiques de spectrométrie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) pratiquées sur des échantillons de câbles vieillis en service [41]. Cette étude a permis de mettre en évidence la présence de bandes d'absorption sur le spectrogramme caractérisant les groupes polaires –OH et C=O. Il est communément admis que l'oxydation conduit à la formation de composés carbonylés électriquement dissymétriques qui jouent souvent un rôle très important dans la dégradation des propriétés diélectriques et mécaniques [16,25]. Ceci renforce l'explication donnée plus haut pour rendre compte de l'augmentation de tgô. G. C. Montanari [17] a montré par des microanalyses la présence de contaminants et des hétérogénéités dans les câbles isolés au PRC. Il est généralement admis que les contaminants dont la plupart sont des métaux [42,43] jouent un rôle catalyseur dans l'oxydation des polyoléfines dont fait partie le PRC. Les hétérogénéités observées dans les câbles en PRC vieillis thermiquement notamment vers les hautes températures pendant une longue durée seraient dues aux sévères dégradations thermiques plus particulièrement oxydatives.

La dégradation des isolants de câbles par oxydation peut réduire rapidement leur durée de vie. Des antioxydants, dont le rôle est de limiter les détériorations accompagnant la réaction d'oxydation, sont incorporés au PRC. Ils doivent agir pendant plusieurs dizaines d'années. Ces additifs empêchent la réaction d'oxydation de se propager, en réagissant eux-mêmes avec les macro-radicaux. Lorsque la quantité d'antioxydant disponible est épuisée, la réaction d'oxydation se propage alors très rapidement [12].

Il a été montré dans une étude [44] qu'il est possible d'améliorer le facteur de pertes en réduisant sa valeur d'un facteur variant entre 4 et 5 et ce, en utilisant en quantité appropriée des additifs de stabilisation en antioxydants qui ont pour rôle d'empêcher la formation des groupes polaires par l'inhibition de l'action de l'oxygène réduisant ainsi la densité des radicaux libres qui peuvent entrer aisément en réaction avec l'oxygène, notamment en phase de mise en oeuvre.

Du point de vue comportement viscoélastique, les spectres du facteur de pertes diélectriques que nous avons obtenus sur les câbles PRC en fonction de la température dévoilent le même comportement que celui observé par L. E. Leguenza et *al.* [32] en utilisant l'analyse thermique mécanique dynamique (DMTA) sur des échantillons prélevés sur le même type de câbles.

Nous devons signaler l'importance de l'étude de la caractéristique tangente de l'angle de pertes diélectriques en fonction de la température sur une large gamme (comme ce fut le cas dans notre investigation) dans la mesure où elle couvre les différents régimes de fonctionnement en service des câbles isolés au PRC. En effet, la réponse diélectrique (palier minimum) observée sur la caractéristique aux alentours de la température de 90°C nous renseigne sur le régime de fonctionnement normal du câble, alors que les pertes relativement importantes obtenues sur la gamme de 110 à 140°C annonce un régime transitoire critique de surcharge des câbles où le risque d'emballement thermique est à prévenir.


**Figure IV.27.** Variation du facteur de pertes diélectriques en fonction de la température avant et après vieillissement continu.



Figure IV.28. Variation du facteur de pertes diélectriques en fonction de la température avant et après vieillissement cyclique.



**Figure 29.** Variations de tg $\delta$  en fonction de la température avant et après 2000 heures.

**Figure 30.** Variations de tgð en fonction de la température avant et après 20 cycles.

### IV.1.6. Influence du vieillissement thermique sur la tension seuil d'apparition des décharges partielles

Une décharge partielle est une décharge électrique dont le trajet se développe sur une partie seulement de l'intervalle isolant séparant des conducteurs. Les décharges partielles (D.P) se présentent généralement sous la forme d'impulsions individuelles qui peuvent être détectées en tant qu'impulsions électriques dans le circuit extérieur (détecteur de décharges) relié à l'objet en essai [45].

Il est généralement admis que les décharges partielles dans les câbles sont un des principaux facteurs de vieillissement. De ce fait et pour prévoir la dégradation à long terme de la tenue électrique des câbles, la mesure des caractéristiques des décharges partielles (tension d'apparition et d'extinction, charge maximale apparente,...etc.) est recommandée.

La mesure de la tension seuil d'apparition des décharges partielles est cruciale, car elle est révélatrice de l'état diélectrique de l'isolation et de la qualité de fabrication des câbles électriques.

Lors de notre investigation, nous avons étudié l'évolution de la tension seuil d'apparition des décharges partielles en fonction du temps d'exposition à la chaleur sous les deux modes différents précités en prenant la température de vieillissement comme paramètre.

L'étude de cette caractéristique a fait apparaître une décroissance de la tension seuil d'apparition des décharges partielles en fonction de la durée et de la température de vieillissement (figures IV.31 et IV.32) [1]. Cette décroissance s'avère moins prononcée sous le vieillissement cyclique. En effet, ce n'est qu'après le dixième cycle que la décroissance commence à devenir plus ou moins significative. Pour la température de 80°C, la tension seuil d'apparition des décharges partielles passe de 47 kV à 45 kV puis à 43 kV puis diminue jusqu'à 37 kV après 20 cycles de chauffage et de refroidissement. A la température de vieillissement de 140°C, la tension seuil décroît de 47 kV à 36 kV de manière continue, puis reste constante au palier 36 kV du 6<sup>ème</sup> au 12<sup>ème</sup> cycle puis diminue jusqu'à 22 kV au 20<sup>ème</sup> cycle. Par contre, sous le vieillissement continu, la tension seuil diminue d'une façon monotone à partir de 45 kV pour atteindre 38 kV et 20 kV après 2000 heures de vieillissement respectivement sous 80°C et 140°C.



**Figure IV.31.** Évolution de la tension seuil de D.P en fonction de la durée de vieillissement continu.

**Figure IV.32.** Évolution de la tension seuil de D.P en fonction du nombre de cycles.

Ces résultats expérimentaux sont bien en accord avec ceux obtenus par de nombreux auteurs [24] sur des modèles réduits (bandes) de polyéthylène réticulé prélevés sur des câbles MT 20 kV vieillis en service pendant plusieurs années. Dans une autre investigation effectuée sur des échantillons de câbles 6,6 kV isolés au PRC ayant subi un vieillissement thermique cyclique pendant 20 jours, il a été montré que les décharges partielles (amplitude de la charge apparente) augmente en fonction de la tension d'essai et de la durée de vieillissement [46]. L'apparition des décharges partielles est probablement associée au processus de fabrication. En effet, le processus de réticulation à l'azote chauffé, utilisé par la câblerie ENICA.Biskra pour la mise en œuvre des câbles isolés au PRC, pourrait entraîner une formation de microcavités, d'impuretés - provenant en grande partie des semi-conducteurs fortement contaminés - et de l'eau.

Ces défauts ou facteurs de vieillissement peuvent, plus ou moins conjointement, contribuer, en présence des contraintes électriques et thermiques, à l'altération des propriétés diélectriques et physico-chimiques du matériau et causer ainsi la défaillance du câble. La diminution du niveau de la tension seuil d'apparition des décharges partielles pourrait être expliquée par la décroissance dans le temps des teneurs des différents produits tels que les stabilisants, les antioxydants ou les produits de décomposition du péroxyde résultant du processus de réticulation sous l'effet combiné de la tension et de la température [24].

Dans les investigations de G. C. Montanari sur les câbles isolés au PRC, il a été montré la présence des hétérogénéités notamment aux températures élevées et aux temps de vieillissement plus poussés [17]. Ceci est rendu possible grâce à l'observation par la SEM et aux microanalyses par l'EDS et le WDS qui ont révélé l'existence de micro-craquelures -microcraks dans la littérature anglo-saxonne- et des contaminants comme le Chlore, le Sodium, le Potassium et le Calcium au sein du PRC, dus probablement à la technologie de fabrication utilisée. Des décharges partielles prenant naissance dans les hétérogénéités sièges de réactions oxydatives pourrait conduire à long terme au claquage diélectrique [43, 47, 48].

La diminution de la tension seuil d'apparition des décharges partielles annonce une dégradation de l'isolant qui au cours du temps, provoque le changement des propriétés aussi bien mécaniques, électriques que physico-chimiques du matériau. La dégradation des propriétés diélectriques sous l'effet de décharges partielles a fait l'objet de plusieurs études. Elle peut trouver son origine en des réactions chimiques telles que l'oxydation des parois des vacuoles [49,50], ou encore être provoquée par l'action chimique due aux bombardements des particules [51,52]. De plus, ces réactions peuvent être accélérées dans le cas d'une oxydation par une augmentation de la température due aux décharges, mais restent cependant insuffisantes pour causer une érosion thermique [52].

Généralement, il est connu que les décharges partielles dans les câbles isolés au PRC causent souvent des arborescences qui constituent une dégradation avancée du matériau conduisant ainsi au claquage du câble [53-55]. Les arborescences d'eaux sont un des problèmes majeurs de la détérioration des câbles PRC [56-58]. Des décharges partielles dont l'amplitude est supérieure à 100 pC ont été détectées dans des câbles en PRC présentant des arborescences électriques de 0,5 mm de longueur [53]. De nombreuses défaillances de ces

câbles pourraient être évitées si ce phénomène est décelé dès les premiers stades de son apparition. La connaissance des valeurs des amplitudes des décharges partielles mesurées au laboratoire revêt une importance capitale dans le domaine de contrôle de la qualité des câbles. Ce dernier, s'effectue conformément à la norme CEI 540 [2].

### IV.2. INFLUENCE DU VIEILLISSEMENT THERMIQUE SUR LES PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES DU PRC

Dans de nombreux cas, les défaillances électriques des câbles sont initiées par des défaillances d'ordre mécaniques. Les caractéristiques mécaniques des isolants électriques doivent être suffisantes afin qu'ils supportent sans défaillance les diverses contraintes mécaniques rencontrées en service (pliage, dilatation, choc thermique...).

Nous nous sommes intéressés à l'effet des conditions de vieillissement thermique sur les propriétés mécaniques du PRC à savoir l'allongement à la rupture et la résistance à la traction. Pour ce faire, nous avons effectué des essais de traction mécanique à l'aide d'un dynamomètre sur des éprouvettes sous forme d'haltère (de dimensions normalisées) prélevées sur les échantillons de câbles 18/30 kV en PRC ayant subi le vieillissement thermique à quatre températures variant de 80°C à 140°C séparément sous les modes continu et cyclique. Les propriétés mécaniques du PRC ont été également mesurées avant vieillissement thermique sur des éprouvettes prélevées d'un câble neuf (non vieilli). Les essais mécaniques ont été faits conformément aux recommandations de la norme CEI 540 [2]. Nous mesurons simultanément l'allongement à la rupture et la résistance à la traction sur la même éprouvette. Les résultats de mesure de l'allongement à la rupture et de la résistance à la traction avant et après vieillissement sous les modes continu et cyclique sont exposés respectivement aux tableaux IV.2 et IV.3. L'allongement à la rupture et la résistance à la traction du PRC diminuent en fonction de la température du vieillissement. Cette diminution est d'autant plus accentuée que la température de vieillissement est plus élevée [8,9,14,59]. Un résultat identique a été remarqué sur des échantillons du même matériau (plaques) avant subi un vieillissement thermique de 5000 heures [30]. Toutefois, les variations des propriétés mécaniques sont inférieures aux valeurs limites prescrites par la norme CEI 502 [18] et répondent ainsi aux recommandations de la même norme (Voir Annexe A.3).

	Allongement à la	Résistance à la	- ΔL(%)	- <u>ΔR(</u> %)
	rupture (%)	traction (N/mm <sup>2</sup> )	L	R
Avant Vieillissement				
	480	18,01		
Après Vieillissement				
à 80°C	440	15,65	7,36	10,57
Après vieillissement				
à 100°C	425,5	14,9	10,42	14,85
Après vieillissement				
à 120°C	413	14,3	13,05	18,28
Après vieillissement				
à 140°C	388,5	13,5	18,21	22,5

**Tableau IV.2.** Propriétés mécaniques du PRC en fonction de la température de vieillissement continu.

**Tableau IV.3.** Propriétés mécaniques du PRC en fonction de la température de vieillissement cyclique.

	Allongement à la	Résistance à la	- ΔL(%)	- ΔR(%)
	rupture (%)	traction (N/mm <sup>2</sup> )	L	R
Avant vieillissement				
	480	18,01		
Après Vieillissement				
à 80°C	462,5	17,31	3,64	3,88
Après vieillissement				
à 100°C	452,5	17,01	5,72	5,55
Après vieillissement				
à 120°C	445	16,61	7,29	7,77
Après vieillissement				
à 140°C	415	14,14	13,54	18,5

Nous avons également constaté que les propriétés mécaniques sont plus affectées sous les conditions de vieillissement thermique continu. En effet et à titre d'indication, l'allongement à la rupture a connu une décroissance de l'ordre de 18,21 % sous le vieillissement continu et 13,54 % sous le vieillissement cyclique et ce, à la température de 140°C. Concernant la résistance à la traction, les taux de variation sont estimés à 22,5 % et 18,5 % respectivement sous les deux modes de vieillissement précités.

D'après V. Langlois et *al.*, la réduction des propriétés mécaniques est intimement liée à la dégradation thermo-oxydante du matériau qui s'accompagne de coupures de chaînes. La vitesse de dégradation augmente avec l'élévation de la température [60]. Les coupures de chaînes provoquent une diminution de la masse moléculaire moyenne et du taux de réticulation, engendrant ainsi une fragilisation du matériau. Les coupures de chaînes entraînent également la diminution de la viscosité du polymère. Dans le cas réel du vieillissement, le PRC subit simultanément des coupures de chaînes et une réticulation. Ses propriétés mécaniques évoluent alors en fonction de la part prise par chacun de ces processus. Mais souvent la présence d'oxygène (oxydation) entraîne une prédominance des coupures du squelette par rapport aux réticulations [16]. De nombreux auteurs [42,61-65] ont montré que durant le vieillissement thermique de longue durée, des réactions de dégradation peuvent survenir, comme le pyrolyse, la thermo-oxydation,...etc. conduisant ainsi à la scission des chaînes macromoléculaires et / ou à la réticulation.

L'augmentation de la perte de masse [3,30] et la diminution du taux de réticulation du PRC [30] au cours du vieillissement thermique pourraient expliquer le résultat obtenu (diminution des propriétés mécaniques).

#### **BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE IV**

- [1] Y. Mecheri, A. Medjdoub, A. Boubakeur, M. Boumerzoug, "Influence du mode de vieillissement thermique sur les propriétés du polyéthylène réticulé chimiquement", Annales de chimie, Sciences des matériau, Lavoisier, Vol. 31, N°. 5, pp. 571-582, Juin 2006.
- [2] IEC 540, "Tests for Insulations and Sheaths of Electric Cables and Cords (Elastomeric and Thermoplastic Compounds", 1983.

CEI 540, "Méthodes d'essais pour les enveloppes isolantes et les gaines des câbles électriques rigides et souples (Mélanges élastomères et thermoplastiques)", Édition 1983.

- [3] D. Anjelkovic, N. Rajakovic, "A new Accelerated Aging Procedure for Cable Life Tests", Electric Power Systems Research, Elsevier Science, N°. 36, pp. 13-19, 1996.
- [4] P. Robert, "Matériaux de l'électrotechnique", Edition Géorgie, Traité d'électricité, EPF Lausanne 1982.
- [5] J. Dubois, "Spectrométrie électronique et hertzienne", Techniques de l'ingénieur A3274, 1989.
- [6] Y. Mecheri, L. Boukezzi, A. Boubakeur, M. Lalouani, "Dielectric and Mechanical Behavior of Cross-Linked Polyethylene under Thermal Aging", Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena CEIDP'2000, Victoria (Canada) IEEE, pp. 560 – 563, November 2000.
- [7] Y. Mecheri, "Influence du vieillissement thermique continu sur les propriétés diélectriques et mécaniques du polyéthylène réticulé chimiquement utilisé dans l'isolation des câbles moyenne tension" Thèse de Magister, Ecole Nationale polytechniques, Alger, Octobre 1998.

- [8] A. Boubakeur, Y. Mecheri , M. Boumerzoug, "Comportement diélectrique et mécaniquedu PRC soumis à un vieillissement thermique continu", Annales de chimie, Sciences des matériaux, Elsevier, Vol. 25, N°. 6, pp. 457- 470, Juillet 2000.
- [9] A. Medjdoub, "Influence des vieillissements thermique et électrique sur les propriétés diélectriques et mécaniques du polyéthylène réticulé chimiquement utilisé dans l'isolation des câbles moyenne tension", Thèse de Magister, C.U.B, Béjaïa, 1997.
- [10] IEC 216, "Guide for the Determination of Thermal Endurance Properties of Electrical Insulating Materials - Part 1: General Guidelines for Aging Procedures and Evaluation of Test Result", 4 <sup>th</sup> Issue, 1991.

CEI 216-1, "Méthodes générales pour la détermination des propriétés d'endurance thermique, des indices de températures et des profils d'endurance thermique", Édition 1991.

- [11] J. F. May, G. Vallet, "Contribution à l'étude des propriétés électriques de certains types de polymères à l'état solide", RGE N°. 4, pp. 255-261, Avril 1972.
- [12] R. Fournié, "Les isolants en électrotechnique Essais, mécanismes de dégradation, applications industrielles, Édition Eyrolles, 1990.
- [13] A. Boubakeur, M. Nedjar, R. Khaili, "Influence of Thermal Ageing on the Properties of PVC", 2<sup>nd</sup> Middle East Power System Conference, MEPCON'92, pp. 124-127, Assiut University, Egypt 1992.
- [14] A. Boubakeur, Y. Mecheri, M. Boumerzoug, "Influence of Continuous Thermal Ageing on the properties of XLPE used in Medium Voltage Cables", 11<sup>th</sup> International Symposium on High Voltage Engineering ISH' 99, London ,U.K, Vol. 4, N°. 467, IEE pp. 236-239. August 1999.
- [15] A. Boubakeur, A. Medjdoub, M. Boumerzoug, "Influence of Thermal Ageing on the properties of Cross-Linked Polyethylene used as Electrical Insulation of Medium Voltage Cables", 10<sup>th</sup> International Symposium on High Voltage Engineering ISH' 97, Montréal, Canada, pp. 25-29, August 1997.
- [16] J. Verdu, "Vieillissement des plastiques", AFNOR technique, Édition Eyrolles, Paris 1984.

- [17] G. C. Montanari, "Chemical, Physical and Microstructural Properties of Thermally Aged Cables Models" IEEE International Symposium on Electrical Insulation, pp. 764 - 768, 1988.
- [18] CEI 502, "Câbles de transport d'énergie isolés par diélectriques massifs pour des tensions assignées de 1 kV à 30 kV", Édition 1983.
- [19] A. Boubakeur, Y. Mecheri, M. Boumerzoug, "Influence du vieillissement thermique continu sur la variation du facteur de pertes diélectriques du PRC utilisé dans l'isolation des câbles moyenne tension", 3<sup>ème</sup> Conférence Maghrébine sur l'Automatique et l'Electrotechnique Industrielle COMAEI'98, Béjaïa, AJOT, pp. 256-258, Décembre 1998.
- [20] J. K. Nelson, "Breakdown Strength of Solids Electrical Properties of Solid Insulating Materials: Molecular Structure and Electrical Behavior", Engineering Dielectrics, Vol. IIA, pp. 445-520, ASTM Publication, 1983.
- [21] R. Bartnikas, "Performance Characteristics of Dielectrics in the Presence of Space Charge", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 4, N°. 5, pp. 544 -557, October 1997.
- [22] H. St-Onge, R. Bartnikas, M. Braunovic, C. H. de Tourreil, M. Duval, "Research to Determine the Acceptable Emergency Operating Temperatures for Extruded Dielectric Cables", Electric Power Research Institute (EPRI), Final Report EL-938, Project 933-1, November 1978.
- [23] A. T. Bulinski, J. P. Crine, B. Noirhomme, R. J. Densley, S. Bamji., "Polymer Oxidation and Water Treeing", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol .5, N°. 4, pp. 558 -570, 1998.
- [24] W. D. Schuppe, M. Saure, H. Andress, K. Möller, D. Meurer, K. Krause, "Méthodes analytiques et physiques pour les modifications d'état dans des plaques ou des isolants de câbles en Polyoléfines", Conférence Internationale des Grands Réseaux Electriques à Haute Tension CIGRE Rapport 15-03, pp. 1-10, 1988.
- [25] J. Verdu, "Vieillissement chimique", Techniques de l'ingénieur A3151, 1980.

- [26] M. Duval, H. St-Onge, "HPLC and DSC Analysis of Cross-Linked Polyethylene from HV Cables", Electrical Insulation, Vol. 14, N°. 5, pp. 264-271, 1979.
- [27] M. M. Epstein, B. S. Bernstein, M. T. Shaw, "Vieillissement et défaillance dans les matériels diélectriques", CIGRE, Rapport 15-01, 1982.
- [28] H. Pospisil, "Stabilization of Polyolefins with thiobisphenols: Mecanisms of Activity and Transformations", International Conference on Advances in the Stabilization and Controlled Degradation of Polymers, Luzern 1985.
- [29] A. Boubakeur, L. Boukezzi, M. Lallouani, D. Abdesselam, "Thermal Ageing Influence on the Electrical and Mechanical behaviour of XLPE", 12<sup>th</sup> International Symposium on High Voltage Engineering ISH'2001, Bangalore, India, Vol. 4, N° .6, pp. 40-43, 2001.
- [30] L. Boukezzi, M. Nedjar, L. Mokhnache, M. Lallouani, A. Boubakeur, "Thermal Aging of Cross-Linked Polyethylene" Annales de chimie, Sciences des matériau, Lavoisier, Vol. 31, N°. 5, pp. 561-569, Juillet 2005.
- [31] R. Fournié, "Les isolants en électrotechnique Concepts et théories", Edition Eyrolles. 1986.
- [32] E. L. Leguenza, R. Robert, J. A. Giacometti, "Dielectric and Viscoelastic Properties of Cross-Linked Polyethylene Aged under Multi-Stressing Conditions", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 11, N°. 3, pp. 406-417, 2004.
- [33] N. G. McCrum, B. E. Read, G. Williams, "Anelastic and Dielectric Effects in Polymeric Solids", New York, Dover, 1976.
- [34] T. Murayama, "Dynamic Mechanical Analysis of Polymeric Materials", New York, Elsevier, 1978.
- [35] N. Amiot, E. David, S. Y. Lee, I. H. Lee, "Influence of Post-manufacturing Residual Mechanical Stress and Cross-linking by-products on Dielectric Strength of HV Extruded Cables", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 9, pp. 458-466, 2002.
- [36] R. Robert, G. P. Souza, L. Akcelr, K. R. Juraitis, "Polarization Effects on LDPE Morphology", J. Appl. Polymer Science, 2003.

- [37] R. H. Boyd, "Strength of the Mechanical α, β and γ Relaxation Processes in Linear Polyethylene", American Chemical Society, N°. 17, pp. 903-911, 1984.
- [38] L. E. Nielsen, R. F. Landel, "Mechanical Properties of Polymers and Composites", New York, Dekker, 1994.
- [39] F. Khabbaz, A. C. Albertsson, S. Karlsson, "Chemical and Morphological Changes of Environmentally Degradable Polyethylene Films Exposed to Thermo-oxidation", Polymer Degradation and Stability, Vol. 63, pp. 127-138, 1999.
- [40] J. C. Chan, M. D. Hartley, L. J. Hiivala, "Performance Characteristics of XLPE Versus EPR as Insulation for High Voltage Cables", IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 9, N°. 3, pp. 8-12, 1993.
- [41] S. Pélissou, R. L'Éciyer, P. E. Beaudoin, G. Sarfi, J. P. Crine, "Caractérisation de câbles extrudés vieillis en service", Rapport IREQ4742 Hydro-Québec, Canada, 1990.
- [42] Z. Ozawa, "Inhibition of Metal-Catalysed Degradation of Polymers", Developments in Polymer Stabilization 7, Ed. G. Scott. Elsevier Appl. Sci. Publ., London, 193-232, 1984.
- [43] A. Garton, S. Bamji, A. Bulinski, J. Densley, "Oxidation and Water Tree Formation in Service-aged XLPE Cable Insulation", IEEE Trans. Electr. Insul., EI. 22, pp. 405-412, 1987.
- [44] C. Sar, M. Sar, M. Valentin, Bui. Ai, "Methods for Lowering Loss Angle Tangent of Thin Polystyrene Films Obtained by Electrical Discharges in Styrene Vapour", Journal of Applied Polymer Science, Vol. 24, pp. 503-570, 1979.
- [45] IEC STANDARD 270, "Partial Discharge Measurements", 1981.CEI 270, "Mesure des décharges partielles", Edition 1981.
- [46] A. Sivathanu Pillai, U. C. Trivedi, "Aging Effect on Partial Discharge Values and Electrical Performance of XLPE Cable", Conference Record IEEE International Symposium on Electrical Insulation, pp. 211-214, Boston, MA, June 1988.

- [47] Y. Yamada, S. Yamanouchi, S. Miyamoto, "The Relation between Voids in XLPE Insulation and Breakdown Strength of XLPE Insulated Cables", Ann. Rep. CEIDP. Nat. Acad. Sci. Washington, pp. 313-322, 1976.
- [48] G. Bahder, T. Garrity, M. Sosnowski, R. Eaton, C. Katz, "Physical Model of Electric Aging and Breakdown of Extruded polymeric Insulated Power Cables", IEEE Trans. Power. App. Syst. Vol. PAS-101, pp. 1379-1388, 1982.
- [49] I. Sakai, Y. Torayama, "Temperature Rise of Insulator Exposed to Partial Discharges between Rod to Plane Electrode", Electrical Engineering in Japan, Vol. 90, N°. 6, 1970.
- [50] Y. Tsukui, Y. Koho, "Deterioration of Insulating Materials due to Partial Discharges in Nitrogen Gas", Electrical Engineering in Japan, Vol. 92, N°.4, 1972.
- [51] T. W. Dakin, H. Hiofski, C. Divenes, "Effect of Electric Discharges on the Breakdown of Solid Insulating", AIEE. Trans., 1953.
- [52] C. Mayoux, Bui Ai, "Scanning Electron Microscope Observation of the Effects of Discharges on Polyethylene", Journal of Applied Physics, Vol. 44, N<sup>o</sup>. 8, August 1972.
- [53] R. Soma, M. Aihara, Y. Ktsoka, "Diagnostic Method for Power Cable Insulation", IEEE Trans. on. Electr. Insul., Vol. EI-21, N°. 6, pp. 1027-1032, December 1988.
- [54] Th. Kwaaitaal, W. M. Van den Eijnden, "Dielectric Loss Measurement as a Tool to determine Electrical Aging of Extruded Polymeric Insulated Power Cables", IEEE Trans. Electr. Insul., Vol. EI-22, N°. 1, pp. 101-105, Februray, 1987.
- [55] J. C. Chan, "Electrical Performance of Oven-dried XLPE Cables", IEEE Trans. Electr. Insul., Vol. EI-13, pp. 444-447, December 1978.
- [56] A. Bulinski, S. Banji, J. Densley, "The Effects of Moisture Content, Frequency and Temperature on the Life of Miniature XLPE Cables", 4<sup>th</sup> IEEE Symposium on Electrical Insulation, Philadelphia, pp. 283-287, June 1982.

- [57] G. S. Eager, G. Bahder, D. A. Silver, "Corona Detection Experience in Commercial Production of Power Cable with Extruded Insulated" IEEE Transactions on Power Apparatus and Systems, Vol. PAS-88, pp. 342-364, April 1969.
- [58] N. B. Timpe, S. V. Heyer, "Laboratory and Field Partial Discharge Studies by a Utility" IEEE International Symposium on Electrical Insulation, Vol.EI-21, N°. 6, pp.1027-1032, December 1986.
- [59] A. Boubakeur, Y. Mecheri, M. Boumerzoug, "Influence du vieillissement thermique sur les propriétés mécaniques et la tension seuil d'apparition de décharges partielles DP du PRC", 4<sup>ème</sup> Conférence Nationale sur la Haute Tension CNHT'02, Gardaïa, AJOT, pp. 55 - 58, Janvier 2002.
- [60] V. Langlois, L. Audouin, J. Verdu, M. Meyer, "Vieillissement thermique du polyéthylène réticulé", Journées d'Études des Polymères (JEPO18), Groupement Français d'études et d'applications des Polymères (G.F.P), Eveux-L'arbresle, Septembre 1990.
- [61] N. C. Billingham, P. D. Calvert, "The Physical Chemistry of Oxidation and Stabilisation of Polyolefins", Developments in Polymer Stabilisation, Elsevier Appl. Sci. Publ., London, pp. 139-190, 1980.
- [62] N. C. Billingham, D. C. Bott, A. S. Manke, "Application of Thermal Analysis Methods to Oxidation and Stabilisation of Polymers", Developments in Polymer Degradation, Elsevier Appl. Sci. Publ., London, pp. 63-100, 1981.
- [63] N. Y. Rapoport, G. E. Zaikov, "Kinetics and Mechanism of the Oxidation of Stressed Polymer", Developments in Polymer Degradation, Elsevier Appl. Sci. Publ., London, pp. 207-258.
- [64] Y. Yamada, S. Yamanouchi, S. Miyamoto, "The Relation between Voids in XLPE Insulation and Electrical Breakdown of XLPE Insulated Cables", Ann. Rep. CEIDP. Nat. Acad. Sci., Washington, pp. 313-322, 1976.
- [65] J. P. Mercier, E. Maréchal, "Chimie des polymères Synthèse, Réaction, Dégradation", Presses Polytechniques et Universitaires Romandes, 1988.

# **CONCLUSION GENERALE**

**ES RESULTATS** exposés dans notre thèse entrent dans la thématique de recherche concernant le vieillissement des câbles de moyenne tension isolés au polyéthylène réticulé chimiquement (PRC) sous l'action de la contrainte thermique. Ce travail s'inscrit au sein d'une collaboration regroupant le partenaire industriel ENICA.Biskra et l'École Nationale Polytechnique (ENP). L'étude est essentiellement axée sur l'influence des conditions de vieillissement thermique sur les propriétés diélectriques et mécaniques du polyéthylène réticulé chimiquement constituant l'enveloppe isolante des câbles 18/30 kV.

Ainsi, pour étudier le comportement des câbles 18/30 kV en PRC sous l'influence du vieillissement thermique, nous avons simulé au laboratoire les conditions de leur fonctionnement en service et ce, en réalisant des essais accélérés de vieillissement thermique de longue durée. La simulation a dans un premier lieu été effectuée à la température de 80°C proche de celle tolérée en service, séparément sous deux modes différents : continu pendant 2000 heures et cyclique durant 20 jours (soit 160 heures de chauffage). L'accélération est rendue possible en appliquant des températures très élevées. Ce mode de simulation pratiqué par de nombreux laboratoires de recherche et organismes de normalisation CEI, IEEE et AEIC permet de reproduire le comportement du câble durant sa durée de vie réelle estimée entre 30 et 40 ans. A cet effet, nous avons fait vieillir des échantillons de câbles en PRC également sous les deux modes précités et d'une manière séparée aux températures : 100, 120 et 140°C. Ces dernières constituent des conditions critiques et sévères de fonctionnement des câbles isolés au PRC. Dans cette optique, des boucles de câbles en PRC ont été installées sur des stands de la station de vieillissement thermique de la câblerie ENICA.Biskra dans des conditions proches de celles rencontrées en service. Une instrumentation adaptée a permis l'acquisition des mesures nécessaires à la régulation du courant de chauffage et à l'exploration des différentes grandeurs faisant l'objet d'étude.

Nous nous sommes intéressés à l'étude de l'évolution des propriétés principales (facteur de pertes diélectriques, permittivité relative, tension seuil d'apparition des décharges partielles) en fonction du temps de vieillissement pour différentes températures d'exposition à la chaleur sous les deux modes cités précédemment. Nous avons aussi étudié la variation de tg $\delta$  et  $\varepsilon_r$  en fonction de la tension et de la température avant et après vieillissement. Les caractéristiques mécaniques (allongement à la rupture et résistance à la traction) en fonction de la température ont été aussi étudiées avant et après vieillissement. Nous avons également

attaché une attention particulière quant au contrôle de la qualité de l'isolant (PRC) en se référant aux recommandations des normes en vigueur concernant le polyéthylène réticulé chimiquement.

La littérature abondante sur la dégradation des câbles isolés au PRC insiste sur le rôle joué par les produits de décomposition dus à la réticulation par l'agent réticulant (péroxyde) et les composés de transformation des stabilisants (antioxydant) d'où l'importance du processus de fabrication dans le vieillissement des câbles électriques. En effet, suite au délaissement de la réticulation sous pression de vapeur d'eau et l'utilisation de nouveaux procédés de fabrication (réticulation à l'azote) avec un PEbd très propre (Extra clean) contenant des péroxydes et des stabilisants performants, la fiabilité des câbles en PRC a été amplement améliorée. L'étude bibliographique entreprise dans le cadre du présent travail a révélé que le processus de vieillissement thermique des isolants polymères est complexe et les mécanismes varient avec les différents matériaux et selon les différentes conditions de service. Dans le cas du polyéthylène réticulé chimiquement, les mécanismes de dégradation thermique sont caractérisés par la perte de constituants volatils tels que des composants de faible poids moléculaire présents à l'origine ou formés durant le processus de vieillissement et l'oxydation qui cause une réticulation moléculaire du matériau en le rendant fragile. A ces mécanismes s'ajoutent l'hydrolyse dans laquelle l'humidité emmagasinée réagit avec l'isolation sous l'influence de la chaleur, et la décomposition chimique des constituants avec formation de produits dangereux.

Les essais entrepris à la câblerie ENICA.Biskra ont permis d'apporter une contribution quant à la connaissance des performances et du comportement diélectrique et thermique des câbles 18/30 kV isolés au PRC fabriqués par la même entreprise soutenant le programme de recherche. Les résultats obtenus pourraient constituer une base de données pour les chercheurs dans le domaine de la caractérisation et la fiabilité des câbles en PRC.

L'analyse des résultats obtenus lors des essais du vieillissement thermique des câbles isolés au PRC permet de tirer les conclusions suivantes:

Une similitude de comportement des propriétés diélectriques et mécaniques étudiées a été obtenue sous les deux modes de vieillissement du point de vue qualitatif (loi de variation). Cependant, sous le mode continu de vieillissement, notamment à la température de 140°C, la dégradation du matériau est plus accentuée, sans toutefois dépasser les valeurs limites fixées par la norme CEI 502.

La constante diélectrique demeure pratiquement constante en fonction de la durée de vieillissement et diminue faiblement avec la température d'essai. Les légères variations de la

permittivité relative enregistrées sous certaines conditions d'essai, laissent penser que le vieillissement thermique n'a pratiquement pas affecté la qualité d'isolation des câbles en PRC du point de vue permittivité relative. Notons que les valeurs de la constante diélectrique mesurées en fonction de la température sous le mode cyclique sont un peu plus élevées que celles obtenues sous le mode continu et ce, pour les différentes températures de vieillissement utilisées. Contrairement à l'effet de la température, la tension d'essai n'a aucune influence sur la variation de la constante diélectrique.

La variation de l'indice de pertes diélectriques en fonction du temps et de la température de vieillissement thermique a mis en évidence l'existence des phénomènes de relaxation dans le matériau polymère (PRC).

Le facteur de pertes diélectriques du PRC a été relativement affecté sous l'action du vieillissement thermique. Ce facteur est d'autant plus accentué que la température est plus élevée. Nous avons pu constaté une augmentation du facteur de dissipation diélectrique par rapport à celui du câble non vieilli thermiquement. L'augmentation observée sur les différentes courbes de tg\delta en fonction de la tension devient rapide en dépassant un seuil d'ionisation de 15 kV. En exploitant la caractéristique du facteur de pertes en fonction de la température, nous avons pu vérifier que les pertes diélectriques présentent un minimum aux alentours de la température de service qui est de 90°C au delà de laquelle les pertes diélectriques augmentent rapidement.

L'exploitation des caractéristiques du facteur de pertes diélectriques en fonction de la tension et de la température revêt un intérêt grandissant du point de vue technique industrielle dans la mesure où cela pourrait nous renseigner sur la qualité de fabrication des câbles haute tension et la limite de leur utilisation en service. En effet, nous recommandons d'utiliser les câbles isolés au PRC fabriqués par l'ENICA.Biskra dans la gamme de tension spécifiée 15 kV - 18 kV et dans la plage de température de fonctionnement  $60^{\circ}C - 90^{\circ}C$ . Et pour une meilleure qualité du câble (augmentation du seuil d'ionisation), il est très important que le mélange polymère-antioxydant-péroxyde utilisé soit le pur possible et que les conditions technologiques de mise en œuvre du câble (extrusion et refroidissement) soient bien définies et contrôlées de manière à éviter la formation de vacuoles (siège de décharges partielles) qui pourraient nuire à la qualité du câble.

Nous devons signaler l'importance de l'étude de la caractéristique tangente de l'angle de pertes diélectriques en fonction de la température sur une large gamme (comme ce fut le cas dans notre investigation) dans la mesure où elle couvre les différents régimes de fonctionnement des câbles isolés au PRC en service. En effet, la réponse diélectrique (palier minimum) observé sur la caractéristique aux alentours de la température de 90°C nous renseigne sur le régime de fonctionnement normal du câble, alors que les pertes relativement importantes obtenues sur la gamme de 110 à 140°C annonce un régime transitoire critique de surcharge des câbles où le risque d'emballement thermique est à prévenir.

La diminution de la tension seuil d'apparition des décharges partielles en fonction du temps et de la température de vieillissement marque une dégradation de l'isolant, qui au cours du temps, provoque le changement des propriétés aussi bien mécaniques, électriques que physico-chimiques du matériau. Cet abaissement de la tension seuil de décharges partielles serait lié au processus de réticulation utilisé par la câblerie, entraînant la formation de microcavités, d'impuretés et de l'eau dans le PRC.

Les propriétés mécaniques du PRC (allongement à la rupture et résistance à la traction) diminuent à mesure que la température de vieillissement augmente. Toutefois, les variations des propriétés mécaniques sont inférieures aux valeurs limites fixées par la norme CEI 502.

D'après nos résultats, pour la température de vieillissement de 80°C, les propriétés du PRC sont pratiquement conservées, tandis que pour la température de 140°C, la dégradation de l'isolant a été atteinte en un temps relativement court.

Il ressort de notre étude que les câbles 18/30 kV en PRC fabriqués par l'ENICA.Biskra présentent une bonne tenue au vieillissement thermique notamment aux alentours de la température tolérée en service (90°C). Cependant, il serait souhaitable de pousser le vieillissement au delà de 2000 heures, afin de pouvoir suivre l'évolution des propriétés du PRC en fonction du temps, et vérifier s'il répond aux normes en vigueur. Par ailleurs, dans le souci de nous rapprocher des réalités de fonctionnement des câbles, il serait aussi souhaitable de confronter ces résultats à ceux obtenus sur des câbles vieillis en service, étant donné que l'augmentation de la contrainte thermique peut modifier la cinétique du vieillissement par rapport aux conditions de service réelles.

En perspective, et pour une meilleure étude du vieillissement des câbles isolés au PRC, des essais de plus longue durée de simulation de vieillissement sous contraintes multiples (électrique, thermique) complétés par des analyses physico-chimiques sont suggérés. Les résultats obtenus de l'expérience pourraient constituer une base de données pour les logiciels d'intelligence artificielle (réseaux de neurones, algorithmes génétiques) de prédiction du comportement à long terme des câbles. En outre, cette base de données constituerait un outil précieux pour la modélisation mathématique du vieillissement des câbles sous contraintes combinées.

## ANNEXE

### A1. Calcul de la permittivité relative du PRC

La permittivité relative  $\epsilon_r$  du PRC constituant l'enveloppe isolante du câble 18/30 kV est obtenue en effectuant le rapport  $C_x$  /  $C_{0.}$ 

Où :

C<sub>x</sub> : capacité du câble mesurée à l'aide du pont de Schering.

C<sub>0</sub> : capacité du câble sans le diélectrique calculée à partir de la formule suivante :

$$C_0 [pF] = \frac{2\pi \varepsilon_0 L}{Ln (D/d)}$$
(A1)

Avec :

 $\varepsilon_0$ : permittivité du vide (8,85 pF/m).

L : longueur du câble en m (L = 12 m).

D : diamètre extérieur du câble en mm.

d : diamètre intérieur du câble en mm.

En tenant compte des dimensions du câble (figure. A1), on calcul C<sub>0</sub>.

$$C_0 = 737, 48 \text{ pF}.$$



Figure. A1. Dimensions du câble PRC 18/30 kV.

Les câbles isolés au PRC 18/30 kV fournis par la Câblerie Algérienne des Industries des Câbles (ENICA.Biskra) présentent les caractéristiques suivantes :

- Nombre de brins : 37 x 2,15 mm
- Diamètre de l'âme conductrice : 13 mm
- Écran semi-conducteur interne : 0,8 + 0,08 mm
- Épaisseur de l'isolant (PRC) : 8 mm
- Couche semi-conductrice externe : 0.4 + 0.04 mm
- Matelas semi-conducteur : 0,2 mm
- Écran métallique en cuivre : 46 bandes 0,70 mm (1x 15x 0,15)
- Section de l'écran métallique: 16 mm<sup>2</sup>
- Séparateur : 1 bande 70 x 0,05
- Gaine extérieur : 2,5 + 0,2 mm.

## A2. Prescription pour les essais électriques de type selon la norme CEI 502.

Propriété fondamentale du mélange	Thermoplastique	Elastomère	
Désignation du mélange isolant	PE	PRC (XLPE)	
Température assignée maximale du conducteur (°C)	70	90	
<i>Résistivité transversale</i> ( $\Omega$ cm)	-	-	
- a 20 C	-	10 <sup>12</sup>	
- à la température assignée maximale de service			
Constante d'isolement $K_i$ (M $\Omega$ Km)	-	-	
- à 20°C	-	3,67	
<ul> <li>à la température assignée maximale de service</li> </ul>			
Pertes diélectriques en fonction de la tension, à			
la température ambiante $t_{\alpha} = \frac{10^{-4}}{10^{-4}}$	10	40	
$- \log \max(10^{\circ})$	10	0	
- Variation maximale de tg $\delta$ (10 <sup>-4</sup> ) entre 0,5 U <sub>0</sub> et 2 U <sub>0</sub>	20	20	
Pertes diélectriques en fonction de la			
<i>température à 2</i> kV - tg $\delta$ maximale à la température (10 <sup>-4</sup> ) ambiante	10	40	
- $tg\delta$ maximale à la température (10 <sup>-4</sup> ) assignée maximale de service	10	80	
Essais de décharges partiellesDécharge maximale à $1,5 U_0$ (pC)	20	20	

## A3. Prescription d'essai pour les caractéristiques mécaniques des matériaux pour enveloppes isolantes avant et après vieillissement selon la norme CEI 502.

	Désignation du mélange isolant		PE	PRC (XLPE)
	Température assignée maximale de l'âme	(°C)	70	90
1.	Sans vieillissement			
1.1	Résistance à la traction minimale	(N/mm <sup>2</sup> )	10	12,5
1.2	Allongement à la rupture minimale	(%)	300	200
2.	Après vieillissement en étuve d'air			
2.0	- température Traitement - tolérance - durée	(°C) (°C) jours	$100 \\ \pm 2 \\ 10$	135 ± 3 7
<ul><li>2.1</li><li>2.2</li></ul>	Résistance à la traction : a) valeur minimale après vieillissement b) variation maximale Allongement à la rupture : a) valeur minimale après vieillissement	$(N/mm^2)$ $(N/mm^2)$		± 25
	b) variation maximale	(%)	-	± 25