

# THÈSE

présentée à

L'ECOLE NATIONALE POLYTECHNIQUE

en vue de l'obtention

du grade de MAGISTER

Spécialité : Electrotechnique

par

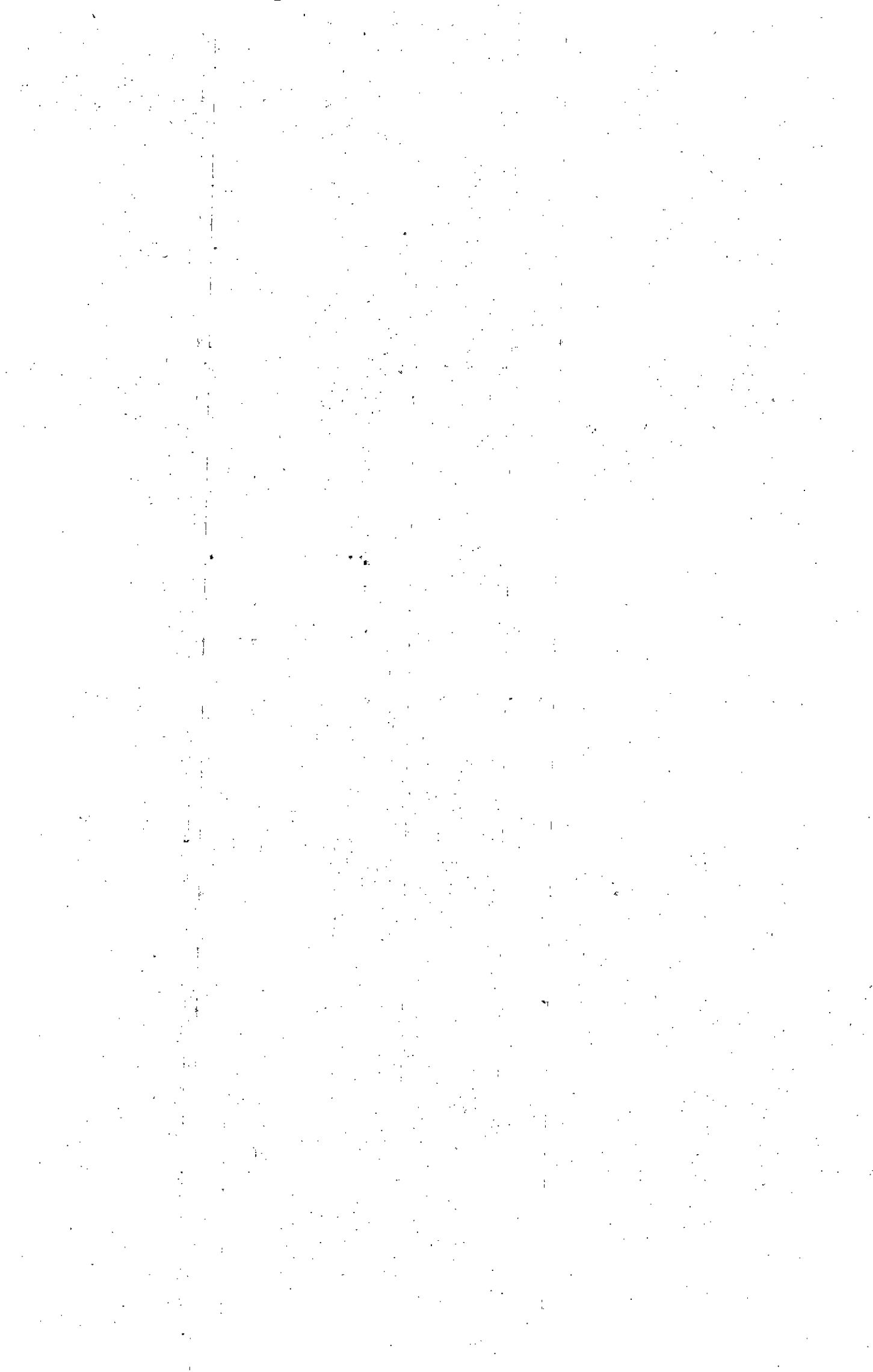
NADIA KHALECHE  
ingénieur

المدرسة الوطنية المتعددة التقنيات  
المكتبة — BIBLIOTHEQUE  
Ecole Nationale Polytechnique

## RUPTURE PAR ARBORESCENCE ELECTRIQUE DU PVC VIEILLI THERMIQUEMENT

SOUTENUE le 6 Juillet 1993, devant la commission d'examen:

MM	A.BEROUAL	Professeur à L'ENP	Président
	A.BOUBAKEUR	Chargé de cours à L'ENP	Rapporteur
	T.SADOUNE	Maître de Conférence à L'USTHB	
	A.OUABDESSELAM	Chargé de cours à L'ENP	Examineurs
	A.MEKHALDI	Chargé de cours à L'ENP	
	M.BELLAGUE	P.D.G. de L'ENICAB	Invité



Avant propos

Ce travail a été effectué sous la direction de Mr A. BOUBAKEUR, Docteur es-sciences techniques, chargé de cours à l'Ecole Nationale Polytechnique. Qu'il retrouve en ces lignes, l'expression de ma profonde gratitude pour sa contribution quant à l'élaboration de ce travail.

Qu'il me soit permis de remercier Mr A. BEROUAL, Professeur à l'ENP, pour avoir lu et corrigé mon travail, et pour l'honneur qu'il me fait en président le jury d'examen.

J'exprime mes plus vifs remerciements à Mr A. OUABDESSELAM, chargé de cours à l'ENP, pour sa coopération quant à la rédaction d'une partie de travail, et pour sa présence en tant que membre du jury de soutenance.

Je tiens à remercier particulièrement Mr T. SADOUNE, Maître de Conférence à l'Institut de chimie de l'USTHB, pour l'honneur qu'il me fait en participant à cette commission d'examen.

Je remercie Mr A. MEKHALDI, chargé de cours à l'ENP, pour avoir accepté de s'associer au jury d'examen.

Je remercie Mr M. BELLAGUE, PDG de L'ENICAB, de me faire l'honneur de participer au jury de soutenance, ainsi que Mr M. KHAILI et Hamid pour toute l'aide fournie et m'avoir résolu tous les problèmes afin de mener ce travail à terme.

Que C. LAURENT, retrouve en ces quelques mots, ma profonde reconnaissance, pour sa bienveillance, et pour m'avoir permis d'effectuer tous mes essais dans son laboratoire (LGE, UPS), et pour son aide et ces directives très précieuses qui m'ont aidé à mener à terme ce travail.

Je tiens à remercier également Mr C. MAYOUX, A. HADID, E. MOREAU, J.P. CHOUCOUPRA, C. BOULANGER, pour leur aide précieuse. Et plus particulièrement, F. MASSINES pour sa gentillesse et son aide lors de mes séjours à Toulouse.

Je remercie M<sup>me</sup> SEBAIBI pour tous ses services et son attention.

A mes amis bien sûr Hania, Dalila, Kader, Samia, Ouahiba, Nadia, Aicha, Houria, et Rachida, je tiens à leur exprimer ma profonde et sincère amitié. Je les remercie également pour leur aide et soutien.

Je remercie tout le personnel de la bibliothèque de l'ENP.



المدرسة الوطنية المتعددة التقنيات  
BIBLIOTHEQUE — المكتبة  
Ecole Nationale Polytechnique

A la mémoire de mon père Farhat

A ma mère

A toute ma famille

A Hania, Nadia, Ouahiba, Samia, Dalila et Aicha.



المدرسة الوطنية المتعددة التقنيات  
BIBLIOTHEQUE — المكتبة  
Ecole Nationale Polytechnique

## INTRODUCTION





Une isolation électrique doit supporter, sans défaillance des contraintes électriques, thermiques, mécaniques et chimiques pendant une durée de vie pouvant aller jusqu'à 40 ans. Cette isolation est principalement organique et est par conséquent davantage sujette à détérioration que les matériaux non organiques utilisés dans d'autres technologies [1].

De nombreuses recherches dans le domaine de la dégradation des polymères ont conduit à la classification des polymères de synthèse par groupes se rapportant non seulement à leur mode de préparation mais aussi au processus selon lequel ils se dégradent et aux méthodes utilisées pour éviter leur décomposition.

La dégradation progressive de la plupart des polymères est principalement provoquée par l'action concertée de l'oxygène, de la chaleur et de la lumière. Le processus de décomposition présente parfois de nombreux aspects, variant selon les divers mécanismes de réaction [2]. L'arborescence est un type particulier de dégradation des isolants des systèmes haute tension qui est susceptible dans certains cas, de conduire à la perforation complète de l'isolation. La naissance et le développement des arborescences résultent de l'existence d'impuretés au sein de l'isolant qui vont induire des concentrations locales du champ électrique [3,4]. La phase d'incubation des arborescences électriques n'est pas dominée par un processus de décharges si toutes les précautions ont été prises pour éviter la formation de vacuoles gazeuses dans les échantillons. La compréhension des processus électriques dans la phase d'incubation (injection de charges) est d'une grande importance d'un point de vue scientifique et technique. Les producteurs de matériels et d'appareillage haute tension (câbles, isolateurs de traversée, condensateurs,...) se trouvent confrontés à des questions de fiabilité des systèmes et de durée de vie. Ils sont donc les premiers concernés par les retombés pratiques de telles études.

Le travail que nous présentons dans ce mémoire rentre dans le cadre d'une collaboration entre l'Entreprise Nationale de l'Industrie des Câbles ENICAB et le Laboratoire de Haute Tension de l'ENP. Le but de ce travail est d'étudier l'influence du vieillissement thermique sur la rupture par arborescences électriques dans les diélectriques solides notamment le Polychlorure de Vinyle.

Ce mémoire comporte cinq chapitres:

-Dans le premier chapitre nous présentons le phénomène d'arborescence dans les solides. Une attention toute particulière est accordée aux arborescences électriques qui font le but de notre travail. Les facteurs influant sur ces arborescences sont étudiés, certains

mécanismes d'initiation et de propagation de ces arborescences sont proposés.

-Le second chapitre comprend une méthode d'évaluation de la durée de vie, basée sur la statistique de Weibull, suivi par la présentation des différents modèles de durée de vie des isolants solides. Dans tous les modèles à l'exception du modèle de Crine, seule une représentation empirique du phénomène de vieillissement est présentée, tandis que ce dernier fait intervenir le processus physique de vieillissement en s'appuyant sur l'énergie de Gibbs et la création de submicrocavités ainsi que leur évolution dans le temps.

-Le troisième chapitre est consacrée à la description des différents dispositifs expérimentaux et aux diverses techniques permettant la détermination des tensions (temps) d'incubation dans le Polyéthylène, la mesure des tensions et des temps de rupture par arborescences électriques dans le PVC vieilli thermiquement, et de la température de transition vitreuse du PVC et puis l'obtention des spectres infra-rouge.

-Dans le quatrième chapitre, nous présentons les résultats préliminaires concernant la phase d'incubation de l'arborescence électrique dans le Polyéthylène, suivi d'un traitement statistique de nos résultats .

-Le cinquième chapitre traite du phénomène de rupture par arborescence électrique dans le PVC vieilli thermiquement à des températures de 80, 100 et 120°C pour des durées de vieillissement différentes. Un traitement statistique de quelques résultats est effectué. La mesure de la température de transition vitreuse nous permet d'interpréter certains mécanismes intervenant dans le processus de dégradation thermique du PVC ainsi que son influence sur les tensions et les temps de rupture. La spectroscopie infra-rouge est utilisée pour l'analyse des résidus de dégradation.

**CHAPITRE I**

**"PHENOMENE D'ARBORESCENCE"**



L'arborescence est un phénomène de préclaquage électrique. Ce terme est attribué à un type de dégradation qui progresse à travers une section d'un diélectrique sous des contraintes électriques. Elle se présente sous forme d'arbre [3].

Le développement de l'arborescence est favorisé par la présence de défauts: hétérogénéités à l'interface des parties isolantes et conductrices, impuretés ou occlusions gazeuses au sein de l'isolant. Ce n'est qu'après un temps de gestation appelé aussi temps d'incubation plus ou moins long qu'elle se manifeste. Le temps d'incubation dépend de la nature du défaut d'où elle est issue [4].

L'arborescence n'apparaît qu'en des points où des conditions critiques sont atteintes. Elle est révélatrice d'un stade très avancé de la dégradation du matériau. Elle est considérée comme un phénomène précurseur du préclaquage [5].

L'arborescence peut ou ne peut être suivie d'une rupture électrique complète de la section du diélectrique où elle est apparue. Mais dans les diélectriques solides extrudés, c'est le mécanisme le plus probable, qui n'apparaît pas rapidement car elle résulte d'un processus de vieillissement [6].

Le phénomène d'arborescence a été observé sous des tensions alternatives, continues ainsi que des tensions impulsionnelles.

L'effet de l'humidité a permis de classer les arborescences en deux catégories :

- les arborescences électriques (milieu sec),
- les arborescences électrochimiques où d'eau (milieu humide ou contenant de l'eau).

#### I-1-Les arborescences électriques:

Ces arborescences sont observables dans les isolants synthétiques anhydres. D'après Eichhorn [6] les premières observations ont été faites en 1912 par Rayner. Robinson publia vers 1935-1936 les premières photos représentant le développement de ces arborescences dans les câbles isolés au papier imprégné d'huile ainsi que dans les isolants solides. Puis d'autres travaux effectués par Whithead, Mason, Kitchen et Pratt s'ensuivirent.

Les essais étaient principalement effectués suivant la méthode de l'aiguille [6]. Ces arborescences caractérisées par l'existence de décharges partielles prennent le plus souvent naissance à partir de défauts existant dans l'isolation (vacuoles, particules étrangères), ou au contact isolant-

protection, tant au niveau de l'écran que de la gaine extérieure (figure I-1), de sorte qu'il se produit en ces points de forte concentration de champ électrique. Autrement dit, il semble que le champ local soit de l'ordre du champ de rupture intrinsèque de l'isolation [5,6].

L'application d'une contrainte mécanique à l'échantillon sous tension, a pour effet de confiner l'arborescence dans un plan perpendiculaire à sa direction [7]. Et le claquage serait plutôt électromécanique.

#### I-1-1-Caractéristiques des arborescences électriques:

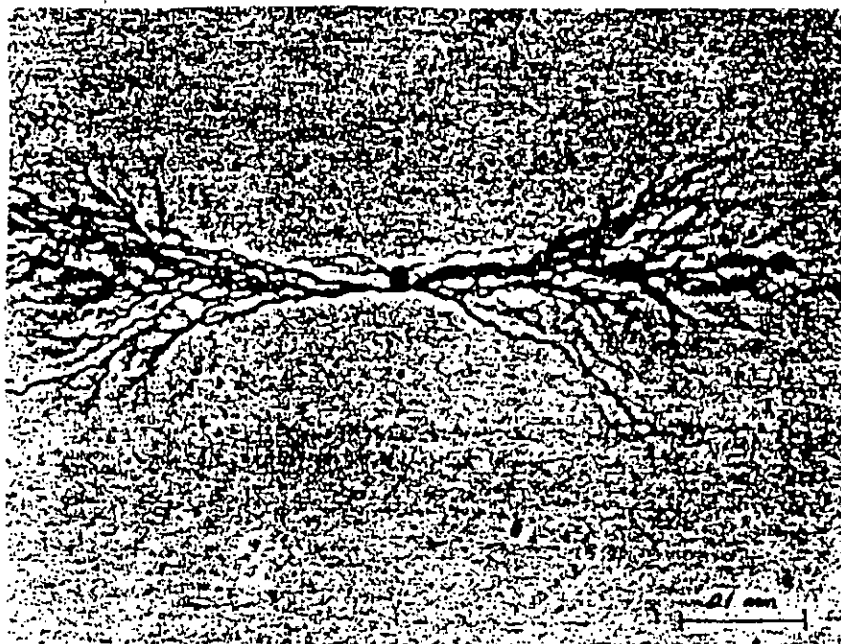
Les arborescences électriques sont constituées de canaux dont le diamètre est de l'ordre de quelques microns, cheminant dans l'isolant de façon erratique et comportant le plus souvent des ramifications. Les décharges électriques, dont ces canaux sont le siège, s'amorcent dans un volume gazeux extrêmement réduit, limité par des parois isolantes. L'atmosphère des canaux d'arborescence est à tout moment, constituée des produits volatiles de décomposition de l'isolant solide [8].

Toutefois, il existe très peu d'informations sur les caractéristiques des décharges qui s'amorcent à l'intérieur de ces microcanaux. Des paramètres tels que la nature et l'état des parois des filaments, ainsi que l'atmosphère gazeuse dans laquelle va s'amorcer la décharge, vont sans doute imposer les caractéristiques d'une telle décharge [9].

Dans le cas du polyéthylène, les canaux sont creux et le diamètre peut varier de un à quelques dizaines de micromètres (figure I-2). La plupart de ces canaux creux sont le siège de décharges électriques comme l'ont prouvé des travaux antérieurs [5]. Le cliché 2 de la figure I-2 montre les phénomènes lumineux consécutifs à l'amorçage de décharges au sein d'une arborescence électrique vue grâce à un amplificateur de brillance. Le temps de pose du cliché est de 10s. Nous remarquons que de nombreuses décharges ont eu lieu lors de ce laps de temps. Elles ne peuvent pas s'amorcer sur la totalité de la longueur du filament, mettant ainsi en évidence le rôle joué par des accroissements locaux de la conductivité des parois des microcanaux, ce qui entraîne des accumulations de charge aux bornes des zones les moins conductrices [5,6,8,9].

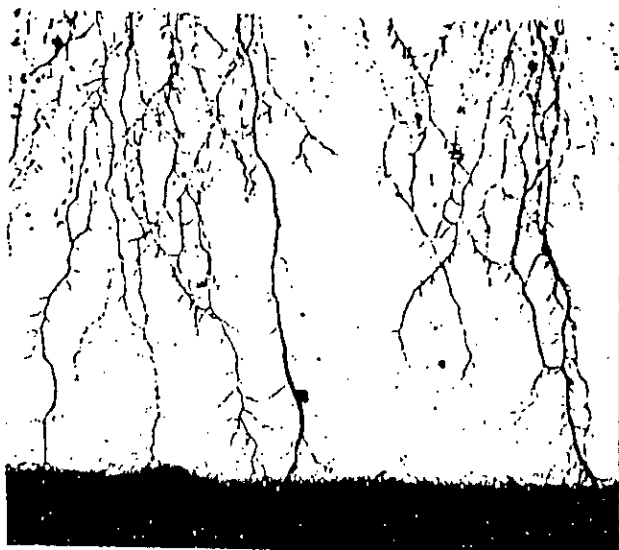


(a): Arborescences électriques à l'interface d'une partie isolante et d'une partie conductrice.

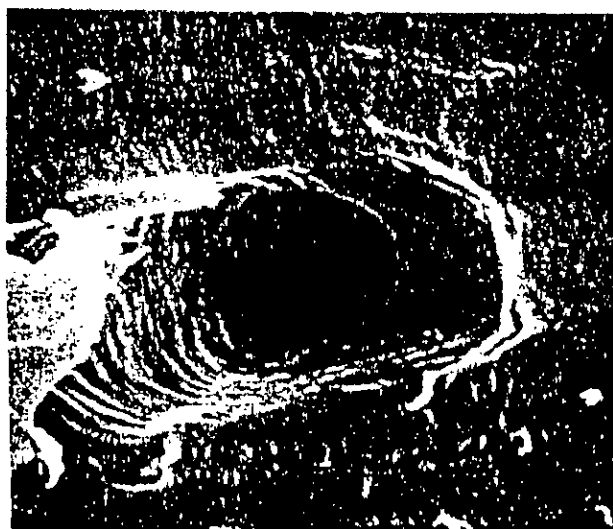


(b): Arborescence électrique autour d'une impureté.

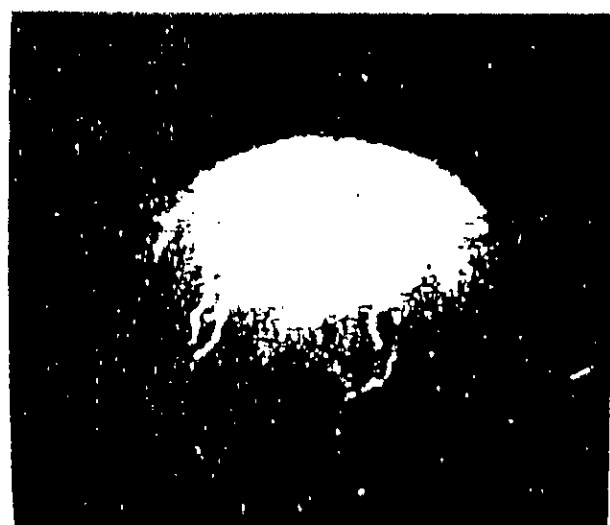
Figure I-1: Figures d'arborescences observées au sein de l'isolation de câble de transport d'énergie [4].



Cliché 1: Canaux d'arborescence dans un échantillon de polyéthylène. Observation en microscopie optique x 50.



Cliché 2: Observation en microscopie électronique à balayage d'un canal d'arborescence coupé perpendiculairement à sa direction de propagation. Diamètre du canal ~ 5  $\mu\text{m}$ .



Cliché 3: Observation à l'amplificateur de brillance des phénomènes lumineux résultant des décharges internes à une arborescence. (contrainte alternative 50 Hz temps de pose 10s). x 30.

Figure I-2: Canaux d'arborescences électriques et phénomènes lumineux à l'intérieur des canaux [4].



### I-1-1-1-Influence des différents paramètres:

Les paramètres qui influent sur l'initiation et la propagation des arborescences électriques sont:

- le champ électrique (électrodes),
- le mode d'alimentation,
- la nature du matériau,
- les paramètres d'état: la température et la pression.

#### a-Le champ électrique:[3,4,5]

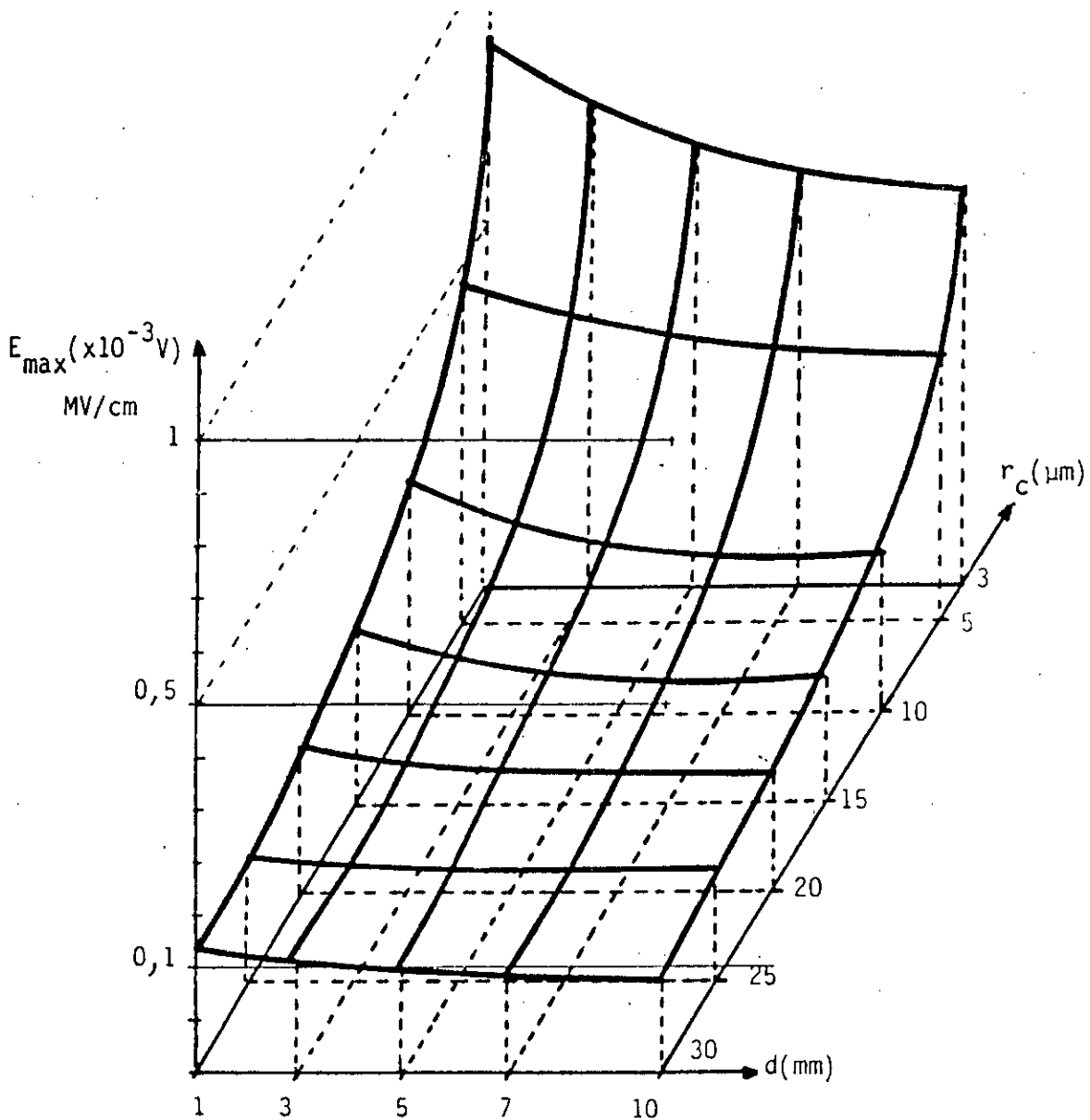
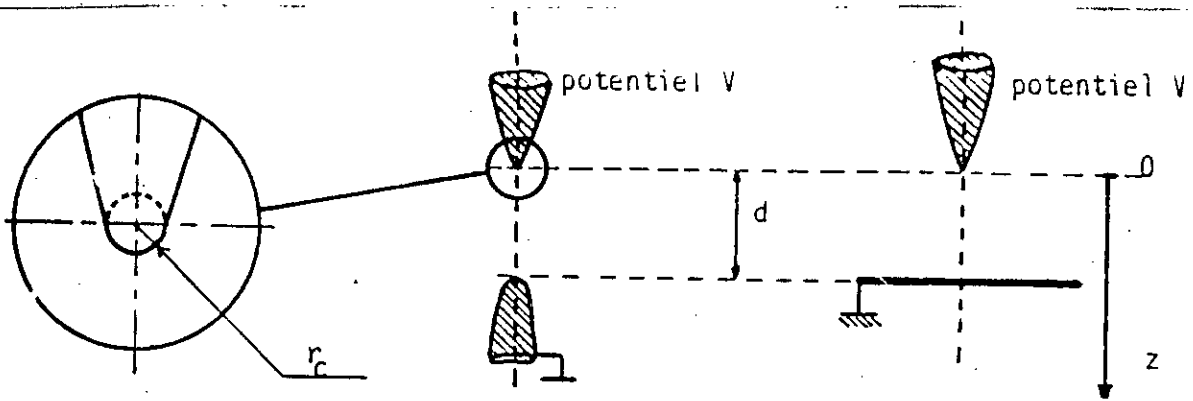
La nature des électrodes, leur forme, leur rayon de courbure et la distance qui les séparent, influent sur l'amplitude du champ électrique. La courbe de la figure I-3, donne la dépendance champ électrique maximum ( $r,d,V$ ) dans le cas d'une configuration pointe-plan. La valeur du champ maximum en pointe de l'électrode influe sur la forme de l'arborescence (branche ou buisson).

#### b-Le mode d'alimentation:[3,4,5]

La polarité, la valeur et la forme de la tension appliqué, l'impédance de la source, les capacités parasites influent sur les phases d'initiation et de propagation. La durée de vie d'un échantillon n'est pas inversement proportionnelle au niveau de tension appliqué mais dépend de la forme de l'arborescence qui se propage. Le tableau I donne quelques valeurs caractéristiques de la tension d'apparition de l'arborescence en fonction de la nature de la contrainte électrique appliquée. C'est une des techniques appliquées pour mettre en évidence la charge d'espace.

Nature de la contrainte	Tension de seuil (kV)	$E_{max}$ (MV/cm)
Impulsionnelle	> 0	38,5
	< 0	41,3
Continue	> 0	40
	< 0	45
Alternative 50Hz	4,7	0,28

Tableau I: Valeurs caractéristiques des tensions d'apparition des arborescences dans le Polyéthylène en fonction de la nature de la contrainte appliquée. D'après [10] ( $r_c \approx 5\mu m$ ,  $d \approx 5mm$ ).



**Figure I-3:** Configuration des électrodes utilisées et variation du champ électrique maximum en fonction du rayon de courbure et de la distance pointe-plan [4].

### c-La nature du matériau:[3,5]

La structure et la morphologie du matériau interviennent dans les deux phases qui régissent le phénomène d'arborescence électrique. La structure d'un polyéthylène par exemple signifie: réticulé ou pas, basse ou haute densité, sa résine (additifs). La morphologie du matériau est fonction de sa mise en forme et de son histoire thermique.

Malgré le progrès qu'ont connu les procédés de transformation et de fabrication des isolants solides, il est toujours difficile d'éliminer de façon radicale, la présence de certains défauts tels que : les hétérogénéités, les impuretés ou occlusions gazeuses au sein même de l'isolant.

L'application d'une contrainte mécanique sur le matériau, confine l'arborescence dans un plan perpendiculaire à sa direction.

### d-La température et la pression:

Des investigations quant à l'influence de la température ont fait l'objet de nombreuses publications.

D'après les travaux effectués par Nawata et al [11] sur le polyéthylène (PE) et ceux, de Noto et al [12] sur le Polychlorure de Vinyle rigide et souple PVC(H) et PVC(S) montrent que la température a une influence importante sur l'initiation des arborescences électriques:

#### 1-Pour le Polyéthylène:

-Le temps d'incubation croît quand la température et la tension décroissent. Ce temps a pour expression [11]:

$$t = A \exp(-nV) \quad (I-1)$$

où : V est la tension alternative appliquée (50 Hz)  
A et n sont des constantes obtenues expérimentalement

-Pour les températures de 30 et 80°C, et des niveaux de tension différents l'arborescence croît rapidement, puis se sature. La forme qu'elle prend est fonction du niveau de tension appliquée.

-Pour des températures plus élevées (> à 80°C), la tension de claquage du PE décroît tandis que l'arborescence croît beaucoup plus vite. Dans ce cas, le gaz piégé à l'intérieur du canal de l'arborescence se diffuse plus rapidement dans le PE, ce qui facilite l'extension de

l'arborescence à travers un arc de décharge.

## 2-Pour le Polychlorure de Vinyle (PVC):

-Dans le cas du PVC(H) ou rigide, la relation donnant l'initiation de l'arborescence à 50% en fonction de la tension appliquée varie avec la température. Elle est donnée par l'expression [12]:

$$\log t = A - n \log V \quad (I-2)$$

où:  $V$  est la tension appliquée (alternative 50 Hz).

$A$  et  $n$  sont des constantes obtenues expérimentalement.

Pour une température donnée, il existe une tension critique  $V_c$  au dessus de laquelle la valeur de  $n$  commence à décroître.

Le mécanisme d'initiation de l'arborescence proposé est fonction de la tension critique  $V_c$ , pour laquelle on définit deux zones:

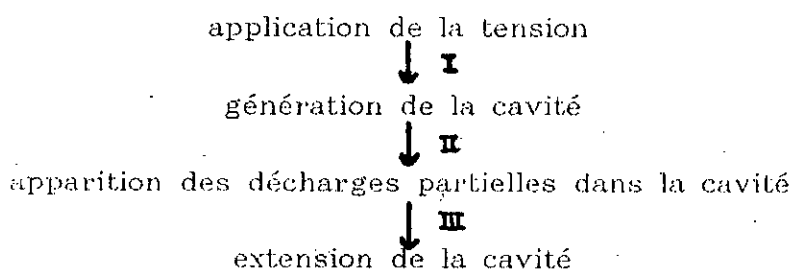
\* La première correspond aux niveaux de tension appliquée supérieurs à  $V_c$ ; le mécanisme associé est la rupture électrothermique du matériau.

\* La seconde correspond aux niveaux de tension appliquée inférieurs à  $V_c$ ; le mécanisme proposé est la rupture électromécanique.

-Dans le cas du PVC(S) ou souple, la relation (I-2) n'est vérifiée que pour la température de 80°C. Pour cette température, les niveaux de tension d'initiation de l'arborescence sont supérieurs à ceux obtenus pour les températures de 20°C, 40°C et 60°C.

On interprète ce cas précis, c'est à dire 80°C, par la formation d'une cavité (observée au microscope) entre la pointe et le polymère dès qu'une tension élevée est appliquée à l'électrode haute tension. Après formation de cette cavité, des décharges partielles apparaissent et l'arborescence s'initie.

Le processus de formation de cette cavité peut être schématisé comme suit:



Le premier processus (I) est dû aux forces périodiques de Maxwell

qui provoquent une rupture par suite de la fatigue du matériau.

Le second processus (II) est dû à l'augmentation de la pression du gaz dégagé lors de l'apparition des décharges partielles, qui entraîne l'augmentation de la température locale du matériau au dessus de son point de fusion.

Pour les deux matériaux ainsi étudiés le PE et le PVC, l'effet de la température a été établi et des mécanismes d'initiation de l'arborescence électrique ont été proposés [11,12].

L'influence de la pression dans les canaux a été mise en évidence grâce à des essais sous tension intermittente. On peut suivre le comportement des décharges partielles: après interruption, dès la remise sous tension, leur niveau est plus élevée, puis revient à une valeur plus voisine de celle mesurée avant la coupure de la tension. La pression des gaz dans les canaux a diminué, pendant l'interruption, par diffusion dans le PE. Mais cet effet pourrait également s'expliquer par une variation de la conductivité superficielle des parois des canaux [9,13]. La pression pourrait favoriser une fissuration du polymère à l'extrémité des filaments et ainsi participer à la propagation [9].

#### I-1-1-2-Mécanisme des arborescences électriques:

##### a-Phase d'initiation:

Plusieurs théories ont été proposées quant aux mécanismes d'initiation de l'arborescence électrique.

Il est établi par Bahder, Dakin et Lawson [14], qui ont revu minutieusement certains mécanismes, que chacun d'eux requiert un champ très intense afin de fournir la densité d'énergie nécessaire à l'activation du mécanisme de dégradation.

Un certain nombre d'hypothèses ont été avancées quant aux processus d'incubation. Sur la base des résultats publiés dans la littérature, nous distinguerons trois groupes de théories [4]:

- celles qui se basent sur l'action des décharges partielles.
- celles qui envisagent une rupture électromécanique du polymère.
- celles qui prennent en considération l'action des porteurs chauds sur la structure du matériau.

##### a-Action des décharges partielles:

Des cavités gazeuses sièges de décharges partielles, peuvent être à l'origine du développement d'une arborescence. L'hypothèse selon

laquelle des décharges pourraient s'amorcer dans des cavités microscopiques de l'ordre du micromètre a été avancée quand l'électrode paraît être en contact intime avec le polymère.

Le niveau apparent des décharges s'amorçant en pointe de l'électrode dans des cavités sphériques de rayon compris entre 1 et 10<sup>1</sup> microns a été évalué par Bahder et al [14]. Il oscille entre 2.10<sup>-5</sup> et 2.10<sup>-2</sup> pC.

D'autres expérimentateurs ont essayé de mettre en évidence ces éventuelles décharges avec des appareils dotés de seuil de détection de 2.10<sup>-3</sup> pC pour des capacités d'échantillon de 0,1 pC [15]. Le résultat auquel ils ont abouti est qu'aucune décharge n'est décelable tant qu'il n'existe pas de cavité observable par microscopie optique en pointe de l'électrode.

Dès que les premières décharges sont enregistrées, selon les configurations où elles se développent, la transition à l'arborescence a lieu plus ou moins rapidement suivant la nature du polymère. Dans le cas du Polyéthylène, la transition est extrêmement rapide: quelques millisecondes. Après la détection des premières décharges l'arborescence apparaît [16]; ce qui n'est pas le cas pour les résines époxy, où la transition est plus lente.

Notons aussi que le bruit acoustique engendré par les décharges a été enregistré pendant la phase de propagation des arborescences, mais que rien de similaire n'a été détecté lors de la phase d'incubation [17,18].

On ne peut cependant exclure complètement, sur la base des mesures électriques, la possibilité d'existence des décharges. Celles-ci possèderaient une amplitude inférieure au seuil de détection des systèmes actuellement utilisés et elles seraient générées dans des cavités non décelables par la microscopie optique. Dès lors, le rôle de ces décharges serait évident dans la phase d'incubation.

Les résultats d'essais réalisés en atmosphère contrôlée n'ont pas permis de lever complètement l'ambiguïté. D'une part, Tanaka et al [19] concluent à la non existence de décharges durant la phase d'incubation, d'autre part, Wertheimer et al [20] déduisent l'inverse. Ces derniers auraient mesuré des décharges de 1 pC qu'ils associent à des phénomènes d'ionisation dans des cavités de dimensions comprises entre 3,5 et 10 µm.

En conclusion, même si la question reste controversée, la majorité des auteurs s'accordent pour dire que dès que des décharges apparaissent, l'arborescence est dans sa phase de propagation.

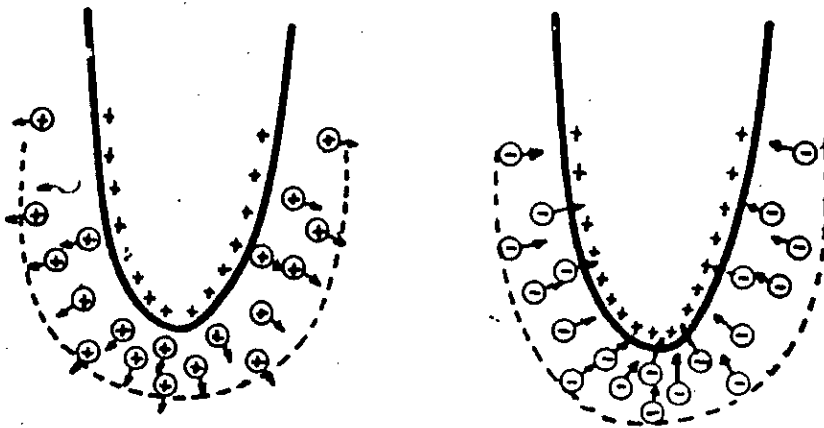
### $\beta$ -Rupture électromécanique du matériau:

L'hypothèse développée par Noto et Yoshimura [12,21] est que l'apparition d'une arborescence serait due à une rupture électromécanique. L'existence d'un champ électrique dans un isolant peut effectivement engendrer des contraintes mécaniques. Ces dernières sont liées :

1-soit à la force attractive qui s'exerce entre électrodes de signe opposé et qui tend à comprimer l'isolant.

2-soit à la force que le champ exerce sur des systèmes d'hétérochargés ou d'homochargés d'espace, réparties en couches plus ou moins épaisses dans le volume avoisinant les électrodes.

Dans le cas d'un système d'électrode pointe-plan dissymétrique, la force s'exerçant entre électrodes reste négligeable vu l'ordre de grandeur des surfaces en regard. La force qui s'exerce sur le diélectrique tend à le comprimer dans le cas d'une hétérocharge; elle apparait donc, moins critique que la force s'exerçant sur une homocharge, qui tend à détacher le diélectrique de l'électrode (figure I-4).



Forces répulsives s'exerçant sur une homocharge.

Forces attractives s'exerçant sur une hétérocharge.

Figure I-4: Force s'exerçant sur un isolant en présence d'une charge d'espace [4].

La pression qui s'exerce sur le diélectrique, lorsque l'électrode est fixe et que l'on suppose qu'il n'y a pas d'accumulation de charges, ou force de compression de Maxwell, est de la forme [22]:

$$P = \frac{1}{2} \epsilon E_{\max}^2 \quad (I-3)$$

Noto [23] a évalué le temps d'incubation pour le Polyéthylène. Il est de 5 secondes pour un champ de 4,8 MV/cm et la pression est  $P \approx 24 \text{ kg/cm}^2$ .

L'action répétée de cette force est évoquée par certains auteurs. Elle produirait une fatigue mécanique proportionnelle à la fréquence de la contrainte électrique. Or l'utilisation d'un signal de fréquence élevée, induit un échauffement local du Polyéthylène dû aux pertes.

Noto [23] a calculé l'élévation de la température du matériau pendant la phase d'incubation. L'expression utilisée découle de l'équation d'équilibre thermique, qui en négligeant la diffusion s'écrit:

$$d_e C_v \left( \frac{dT}{dt} \right) = \omega \epsilon E_{\max}^2 \text{tg} \delta \quad (I-4)$$

soit  $t_i$  le temps d'incubation. Connaissant les variations  $t_i(\omega)$  et en faisant l'approximation  $dT/dt \approx \Delta T/t_i$  il vient: L'élévation de la température n'est importante qu'aux temps longs et pour des fréquences élevées. La diminution de la résistance mécanique du polymère avec la température ne peut être associée à l'apparition de l'arborescence aux basses fréquences.

En conclusion, l'action électromécanique du champ électrique devient critique lorsque la fréquence utilisée est grande.

#### $\gamma$ -Action des électrons chauds sur la structure du polymère:

L'hypothèse selon laquelle l'apparition de l'arborescence serait principalement due à l'action des électrons chauds a été émise par Eichhorn [24]. Elle se résume comme suit:

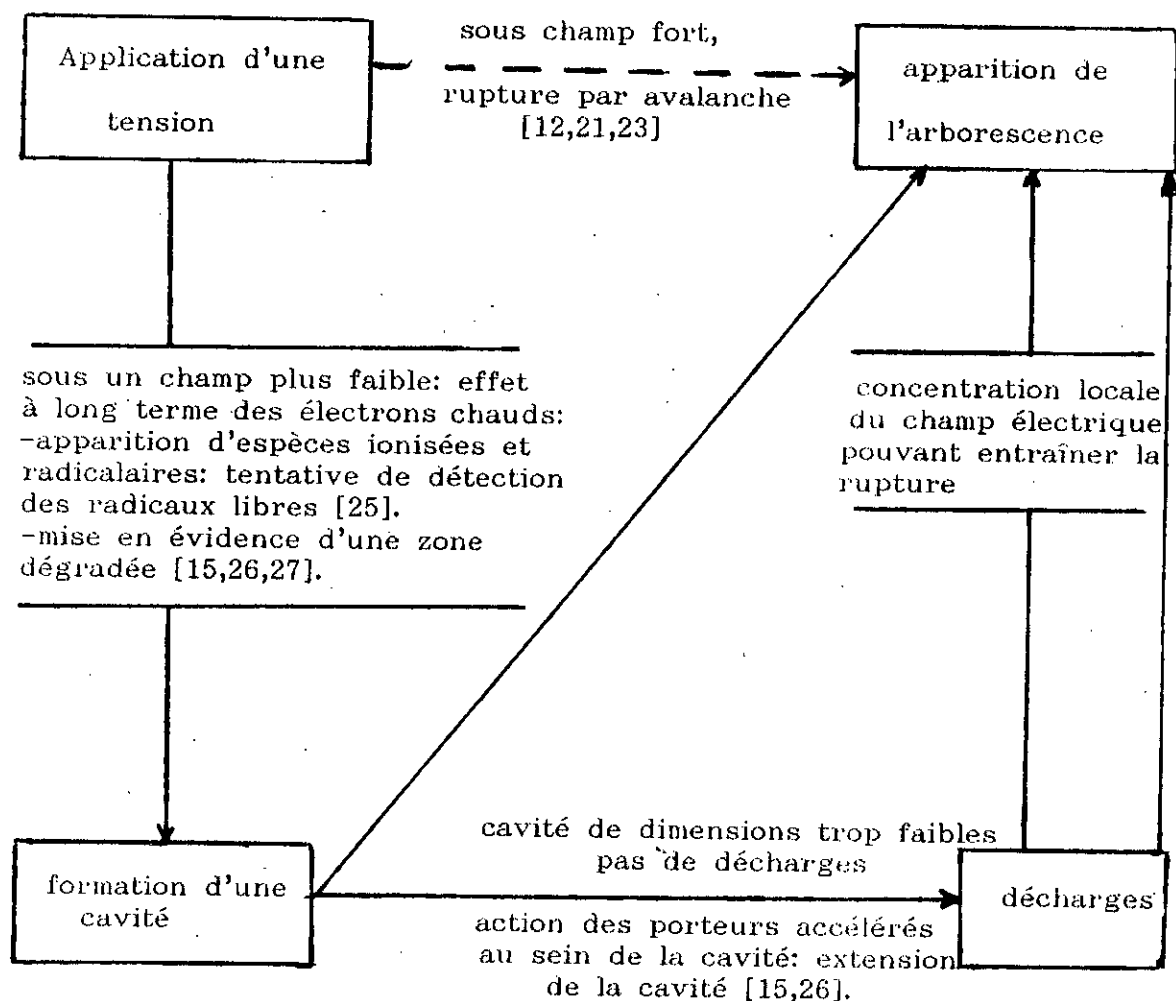
1-Il se produit une injection d'électrons par effet de champ à l'interface métal-polymère. Certains d'entre eux, lors de leur accélération, peuvent atteindre des énergies de l'ordre de 10 eV correspondant à un libre parcours moyen de 100 Å, supposé exister aux interfaces des parties cristallines et des parties amorphes du polymère, sous un champ de 10 MV/cm.

2-Des collisions ioniques se produisent entre les électrons les plus énergétiques et les molécules du polymère, pouvant conduire à des ruptures de liaisons. Ces électrons se piègent ensuite et constituent une charge d'espace. Une partie d'entre eux peut être dépiégée lors des alternances positives de la tension appliquée.



3- Une action répétée de ce type conduit à la formation au sein du polymère, d'une zone de bas poids moléculaires qui diffusent et laissent finalement une cavité dans laquelle les décharges sont susceptibles de s'amorcer.

Le schéma de la figure I-5 résume les processus de dégradation les plus couramment évoqués dans la littérature comme étant à l'origine du phénomène d'arborescence [4].



**Figure I-5:** Processus de dégradation du polymère sous l'action des électrons chauds [4].

**b-Phase de propagation:**

Un grand nombre d'ouvrages traitant de la phase de propagation des arborescences a été publié avant l'année 1977. Les conclusions tirées sont:

- Les décharges électriques s'amorcent dans les microcanaux dès

l'apparition d'une cavité à l'intérieur du matériau. Elles sont à l'origine de la propagation de l'arborescence [4,8,9].

-Le champ électrique intense près de l'électrode initiatrice du phénomène est reporté à l'extrémité des canaux, soit du fait de la présence d'un gaz ionisé dans les cavités, soit à la suite de la carbonisation des parois. De ce fait, les canaux sont considérés comme la prolongation des électrodes [4,8,9].

-Conformément à la loi de Paschen, la valeur de la pression des gaz de décomposition interne aux microcanaux impose l'apparition des décharges, par conséquent la vitesse de propagation et la forme des arborescences [8,9].

Cependant un certain nombre de travaux publiés pendant l'année 1977, viennent remettre en question certains de ces concepts.

L'étude des courbes représentant l'évolution des décharges partielles, pour certaines conditions électriques, en fonction du temps de vieillissement montre des paliers caractéristiques d'un niveau de décharge faible, tandis que simultanément on note un certain ralentissement voire un arrêt dans la croissance des filaments [28 ÷ 31]. Les décharges sont accompagnées de phénomènes lumineux qui s'éteignent dans certaines parties de l'arborescence [29,30]. La pression élevée des gaz de décomposition ne peut expliquer complètement la disparition des décharges ni l'évolution du phénomène [29,30].

On ne peut donc caractériser un type particulier d'arborescence par une vitesse de propagation unique. Dans les courbes de décharges, les paliers observés expliquent l'impossibilité d'établir des critères de fin de vie basés sur l'amplitude des décharges partielles.

Les résultats obtenus par Borishade et Cooper [32] soulignent l'impossibilité de considérer les filaments des arborescences électriques comme le prolongement des électrodes.

Les expérimentateurs qui se basent sur des systèmes à aiguille avec une cavité à sa pointe ("Vented Needle") soulignent tous que l'arborescence se propage plus vite [33,34]. Or l'expérience présente un caractère aléatoire [33]. Le phénomène semble être expliqué par la diffusion des gaz à l'interface aiguille-polymère [33]. Cependant, on n'envisage pas l'influence de la présence de la cavité sur les caractéristiques de la décharge.

En conclusion, les données récentes sur les mécanismes de propagation des arborescences électriques soulignent la complexité du

phénomène ainsi que sa diversité. Les concepts précédents semblent être remis sérieusement en question [4].

### I-1-2-Facteurs pouvant limiter le phénomène d'arborescence:

Plusieurs précautions peuvent être prises notamment au niveau des méthodes d'extrusion et de préparation des isolations. Le but est de limiter le nombre de sites susceptibles d'être le siège d'une arborescence. Pour cela il est impératif [5]:

- de mettre en oeuvre de nouveaux procédés de réticulation pour le polyéthylène réticulé.

- d'améliorer les méthodes d'extrusion en les rendant de plus en plus "propres" (limiter les "défauts" au niveau des interfaces isolant-protection).

- d'imposer de meilleures préparations de l'isolant industriel: limiter la taille des impuretés présentes (poussières d'aluminium, de silice, de noir de carbone au niveau de l'écran, voir de grosses sphérolytes), et celle des microcavités.

- d'imprégner l'isolant de liquides (silicone) ou de certains gaz (inertes).

- d'adjoindre des additifs qui ont pour rôle, de diminuer considérablement l'intensité du champ d'apparition des arborescences, voir parfois même de parer complètement à cet aléa. Il existe deux sortes d'additifs: additifs inorganiques, additifs organiques. De nombreux résultats ont été obtenus par Eichhorn [3,6] sur les additifs organiques. Ces derniers ont été classés en fonction d'une tension dite tension caractéristique, qui est proportionnelle à leur efficacité. Les résines de base sont aussi classées suivant les mêmes critères. L'action bénéfique des produits à structure aromatique y est expliquée: il y a interaction entre ces structures et les électrons chauds du milieu qui ne sont donc plus disponibles pour casser les molécules du polymère. L'effet bénéfique d'additifs non ioniques est aussi envisagé [35]. Ils augmenteraient le seuil d'incubation des arborescences ainsi que la durée de vie des éprouvettes en agissant sur la rigidité diélectrique intrinsèque du matériau.

### I-2-Les arborescences électrochimiques ou d'eau:

Les premières investigations sur les arborescences d'eau ont fait ressortir ces dernières comme étant la cause principale des claquages à moyen et long terme dans les câbles susceptibles d'être contaminés par l'eau [36,37,38]. Cependant, des travaux récents viennent infirmer cela. Leur responsabilité directe dans le claquage n'est pas prouvée, mais leur rôle comme précurseur du phénomène de rupture est considéré par tous comme fondamental [39]. Elles ont été mises en évidence pour la première fois en 1953 au Japon sur des câbles 600 V-50 Hz en service à proximité

d'usines chimiques [40]. Puis on s'intéressa aux câbles enterrés ou sous-marins surtout aux USA et au Japon [37,38,39,41].

Elles se développent en général en présence d'eau, ayant diffusé accidentellement de l'extérieur vers l'isolant.

Ces arborescences prennent naissance à partir de défauts internes à l'isolation ou à proximité des interfaces isolant-protection. Près des protections, elles se développent en prenant l'aspect d'algues, d'herbes, de plumes, de fougères, de nuages, etc... A l'intérieur de l'isolation elles se présentent sous forme de noeud-papillon (figure I-6) [37,38,42-48]. Ces dernières n'ont jamais été observées avec un développement important. Leur caractérisation électrique est très controversée, et leur structure n'a jamais, jusqu'à présent, été établie précisément. Notons enfin qu'elles n'ont pas pour origine des décharges partielles.

Il est bien entendu que des liquides autres que l'eau peuvent générer le même phénomène.

Les arborescences sulfureuses ont fait l'objet d'une étude en 1972 par T.Tabata [49]. Ces arborescences diffèrent des précédentes par la présence, dans l'eau, de sels métalliques.

#### I-2-1-Caractéristiques des arborescences d'eau:

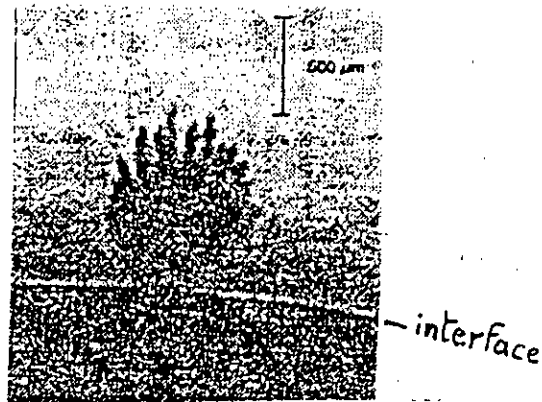
Ces arborescences ne sont visibles que si on les colore. Elles forment alors une image qui rappelle celle d'un buisson, dont l'axe principal est toujours parallèle à un rayon du câble [6]. Elles peuvent se présenter sous deux formes, selon leur position dans l'isolant. Deux terminologies anglo-saxonnes sont alors employées:

-On nomme "vented tree" l'arborescence qui se développe à partir de l'interface externe isolant/semi-conducteur.

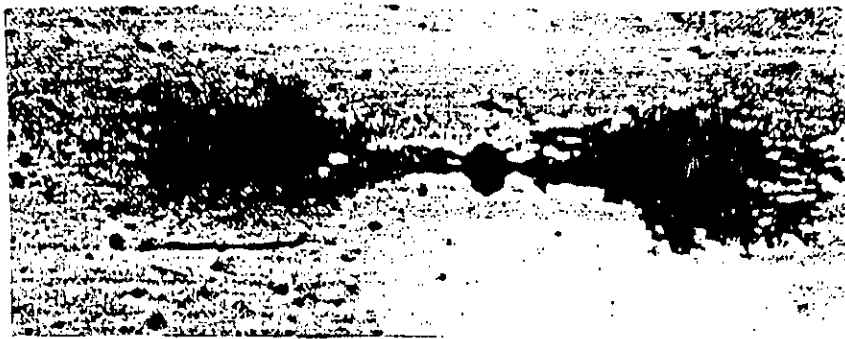
-On nomme "bow tie-tree" l'arborescence qui se développe à partir d'une impureté au sein même de l'isolant. Elle croît alors dans les deux sens tout en gardant une direction parallèle au rayon du câble.

L'apparition et la croissance de l'arborescence d'eau dans un isolant solide, exemple le polyéthylène noté PE, dépend de plusieurs paramètres [6,39]:

- l'intensité du champ électrique,
- la fréquence de ce champ,
- la température,
- le type d'ions contenus dans l'eau,
- la concentration en ions,
- la nature du matériau.



Cliché 1: Vented tree: arborescence se développant à partir de l'interface externe isolant/semi-conducteur



Cliché 2: Bow-tie tree: arborescence se développant à partir d'une impureté au sein même de l'isolant. Elle croît dans les deux sens tout en gardant une direction parallèle au rayon du câble.

Figure I-6: Figures d'arborescences d'eau observées dans des câbles sous-marins [39].

I-2-1-1-Influence des différents paramètres:[6,39]

a-Amplitude du champ électrique:

La croissance des arborescences suit une loi linéaire par rapport à l'amplitude du champ électrique. Mais il faut savoir qu'un champ électrique trop élevé fera apparaître des arborescences électriques plutôt que d'eau.

b-Fréquence du champ électrique:

La propagation des arborescences croît avec la fréquence du champ électrique jusqu'à une certaine valeur de 8 kHz, puis décroît sensiblement.

### c-Température:

L'effet de la température n'est pas très bien défini. Selon certains auteurs, la température réduit ou augmente la croissance des arborescences. En fait, d'autres paramètres doivent influencer sur ce comportement (notamment le paramètre temps). Elle agirait plus sur la morphologie du polymère, (effet de recuit, ou rigidité accrue du polymère aux basses températures), que sur l'arborescence elle-même.

### d-Nature du matériau:

Trois paramètres interviennent:

1-La structure du matériau utilisé, exemple pour le Polyéthylène (PEBD, PRC,...), et sa chimie (additifs).

2-La morphologie du matériau, qui, bien que dépendante de sa structure, peut être différente, elle est fonction de sa mise en forme (moulage par compression, ou extrusion), et de son histoire thermique (recuit éventuel), et de son irradiation.

3-Un état de contrainte mécanique sur le matériau favorise le développement de ces arborescences.

### e-Électrolyte:

Deux paramètres sont importants dans l'électrolyte:

1-La concentration élevée en ions, qui induit une plus grande activité, favorise la propagation de l'arborescence.

2-La nature et la taille des ions. On a remarqué que plus les ions sont gros, moins l'arborescence se développe.

### I-2-2-Microscopie optique des arborescences d'eau:

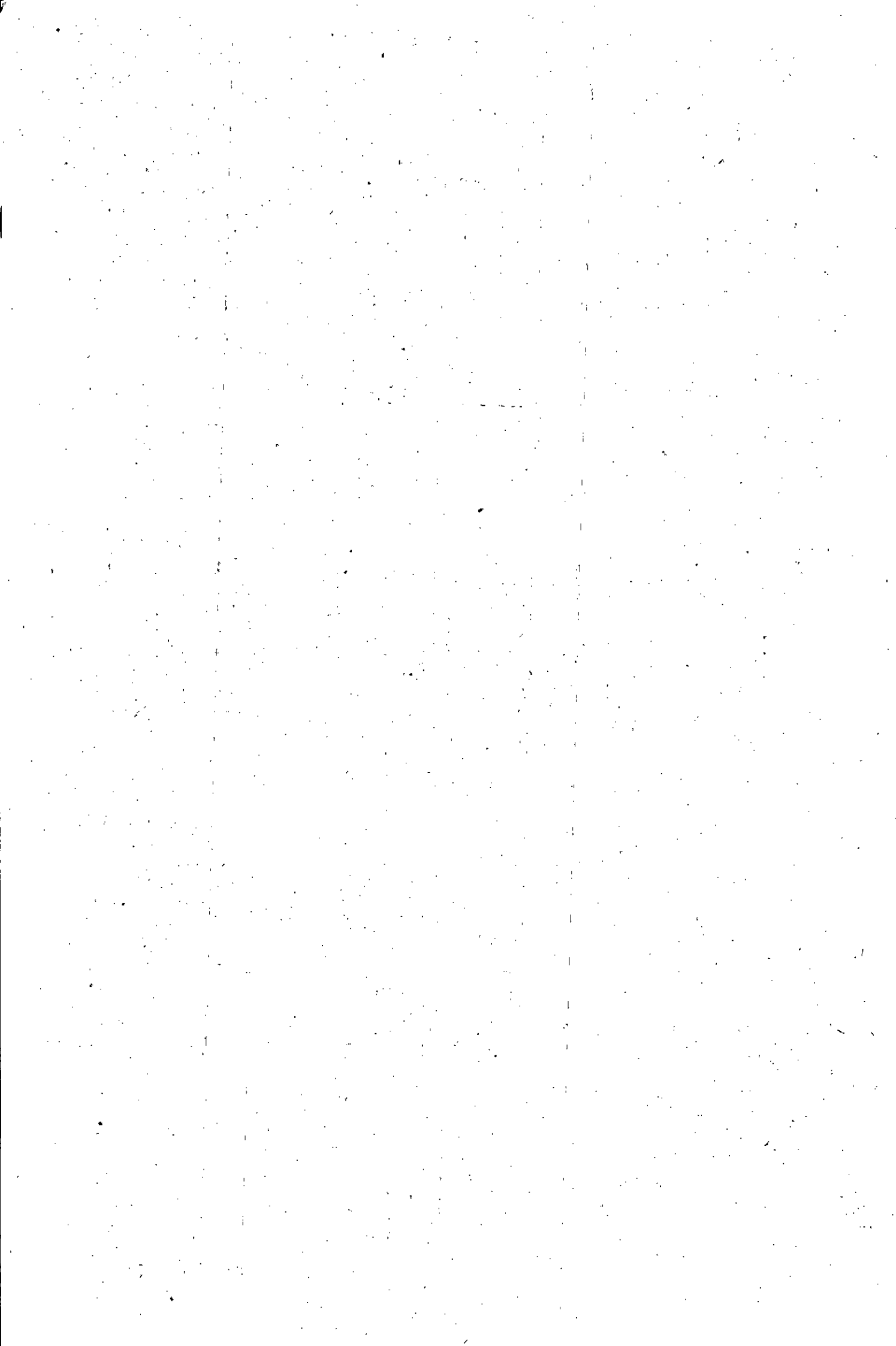
La technique de visualisation des arborescences la plus courante est la microscopie à lumière à agrandissement relativement faible ( $< x 500$ ), qui après coloration donne une image générale de l'arborescence. C'est sur ce type d'image que la plupart des théories se sont fondées pour décrire l'effet des différents paramètres influant sur l'initiation et le développement des arborescences [50]. Deux hypothèses sont en compétition quant à la structure de l'arborescence à savoir:

- structure à canaux continus,
- structure en microcavités non connectées.

Conclusion:

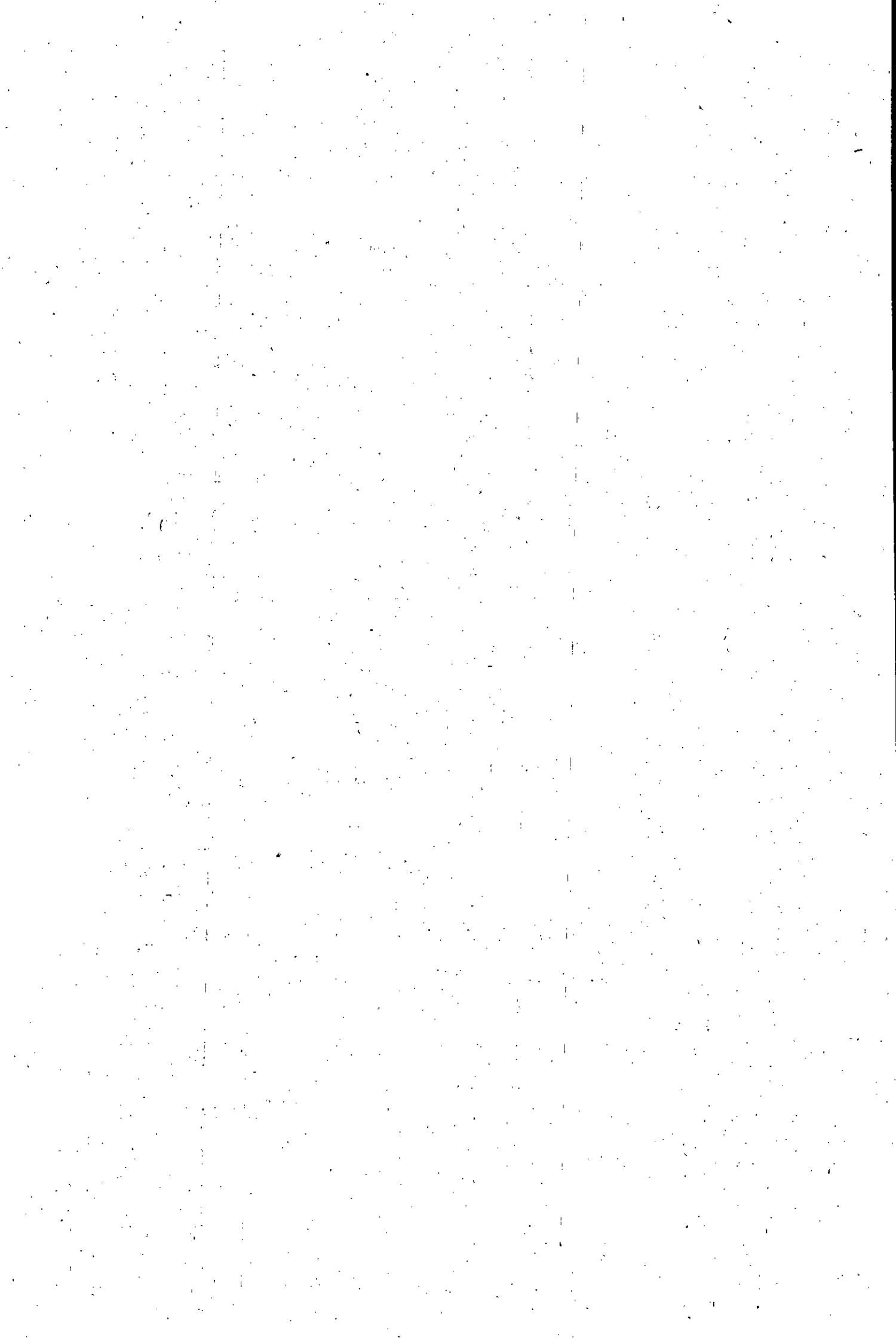
Le nombre de travaux entrepris dans le domaine des arborescences reflète la préoccupation des industriels quant aux claquages par arborescences des câbles en service.

Au cours de ce travail, il nous a été demandé d'étudier la rupture par arborescences électriques du Polychlorure de Vinyle (PVC) utilisé dans l'isolation des câbles 10kV à l'ENICAB, vieilli thermiquement, et d'essayer d'interpréter les mécanismes qui régissent cette rupture.





CHAPITRE II  
"METHODE ET MODELES  
D'EVALUATION DE LA DUREE DE  
VIE  
DES ISOLANTS SOLIDES"



L'étude du phénomène de vieillissement, électrique ou thermique ou bien les deux contraintes combinées, d'un isolant solide a deux buts principaux. Le premier est l'évaluation de la durée de vie de ces isolants sous l'effet des contraintes considérées. Le second but est de trouver une éventuelle corrélation entre le processus de vieillissement et les contraintes qui le provoquent.

D'où la nécessité d'introduire dans ce second chapitre les méthodes et les modèles utilisés dans les études de vieillissement.

## II-1-Principe et méthode d'évaluation de la durée de vie d'un isolant solide:

Une exploitation rationnelle des résultats de vieillissement répartis de façon aléatoire, nécessite une approche statistique du phénomène. Cependant, cette dernière qui constitue un simple outil mathématique pour l'analyse des résultats ne peut se substituer à l'analyse physique desdits phénomènes.

Dans le cas de la rupture diélectrique des isolants solides à contrainte de tension constante, deux modèles statistiques peuvent être utilisés: la loi Laplacienne (dite aussi normale) à argument logarithmique et la loi de Weibull [51,52].

### II-1-1-Choix de la statistique de Weibull:

La courbe de densité de probabilité de rupture diélectrique à tension constante en fonction du logarithme du temps de claquage ( $\log t$ ) (figure II-1), a une allure Laplacienne et est pratiquement symétrique par rapport à une valeur médiane.

Cette symétrie approximative, suggère que la loi de probabilité adoptée peut être une loi de Laplace à argument logarithmique dont la densité de probabilité est donnée par la relation:

$$\frac{dF(t)}{d(\log t)} = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_{\log t}} \exp\left[-\frac{(\log t - \overline{\log t})^2}{2\sigma_{\log t}^2}\right] \quad (\text{II-1})$$

$F(t)$  est la fonction de répartition, c'est-à-dire la probabilité de voir le phénomène (claquage) se manifester à un temps inférieur ou égal à  $t$ .

$\overline{\log t}$  est la valeur moyenne de  $\log t$ .

$\sigma_{\log t}$  est l'écart-type quadratique de  $\log t$  rapporté à la valeur moyenne  $\overline{\log t}$ .

La courbe de la figure II-1, peut être aussi décrite par une loi de Weibull. Bien que cette dernière ne corresponde pas rigoureusement à un

histogramme symétrique par rapport à une valeur médiane, il semble pour plusieurs raisons que cette loi est la mieux adaptée pour l'analyse du claquage [53].

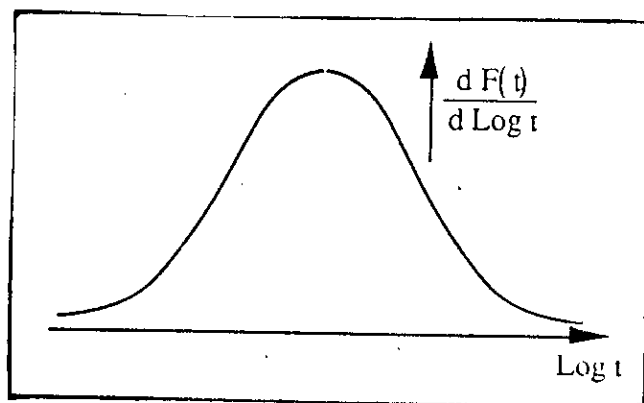


Figure II-1: Courbe de densité de probabilité en fonction de  $\log t$ .

En effet, le modèle de Weibull exprime la probabilité de rupture d'une chaîne en fonction de la probabilité de rupture d'un maillon quand le nombre de maillons est grand [54]. La concordance est bonne pour un diélectrique solide, où un claquage, phénomène local à l'origine, entraîne la rupture complète de l'isolant. Elle est utilisée en particulier pour la détermination des temps de claquage électrique et mécanique des composants et des systèmes présentant plus d'un mode de défaillance.

Il se trouve aussi que l'étude comparative de Oudin et al [55] entre la loi de Weibull et la loi normale à argument logarithmique a montré:

- la grande souplesse de la loi de Weibull qui peut être assimilée à la loi normale à argument logarithmique.

- que pour de faibles probabilités, l'hypothèse d'une loi de Weibull correspond à des probabilités plus fortes et est par conséquent plus pessimiste que l'hypothèse laplacienne. On peut considérer que cette prévision plus pessimiste apporte plus de sécurité.

- que le modèle de Weibull permet de retrouver la loi de durée de vie donnée par le Modèle de Puissance Inverse connu expérimentalement.

#### II-1-2-Description statistique de la rupture:

La rupture est un phénomène aléatoire: Pour des échantillons d'un même diélectrique placés dans des conditions expérimentales identiques, on n'obtient pas un champ de rupture unique mais une distribution de

valeurs [4,53,56,57].

La probabilité de rupture diélectrique P, d'un échantillon de volume V, sous un champ E, est une fonction à trois variables (E,t,V) qui s'exprime sous la forme:

$$P(E, t, V) = 1 - \exp - [D(V) a \int_0^t t^{a-1} E^b(t) dt] \quad (\text{II-2})$$

où: a, b et D(V) sont des caractéristiques de l'échantillon.

L'utilisation de la statistique de Weibull dans l'exploitation des résultats d'essais industriels s'avère commode. Les besoins dans ce domaine se traduisent par:

-L'extrapolation d'essais sur peu d'échantillons aux très nombreux échantillons des systèmes réels.

-L'extrapolation d'essais de courte durée sous forte contrainte aux très longues durée de vie requises sous contrainte de service plus faible.

Les fondements de cette théorie statistique reposent donc sur une démarche empirique. Ce n'est pas la seule description statistique possible et sa validité n'a encore pas été vérifiée pour toutes les contraintes électriques, ni pour tous les types d'isolants. Un complément sur cette méthode est donné en annexe.

Cependant elle présente certains avantages et le fait qu'elle rende compte de la dispersion des valeurs de rupture dans bon nombre de cas pose le problème de sa signification [53].

Généralement on utilise deux formes réduites de cette statistique, qui sont des représentations à deux variables (E,t), le paramètre V étant négligé.

#### II-1-2-1- Représentation E(t): Loi de type puissance:

Pour un champ électrique constant, la probabilité de rupture est constante. L'équation (II-2) devient alors:

$$E^n \cdot t = \text{Constante} \quad (\text{II-3})$$

avec:  $n=b/a$  et  $n \approx 5$  à 20

b est le paramètre de dispersion en champ, supérieur à 1.

a est le paramètre de dispersion en temps, légèrement supérieur à 1.

Plus le coefficient n est grand, mieux le champ de rupture est défini. Bien que cette relation soit largement utilisée, il n'est pas évident

qu'elle représente mieux qu'une autre loi de type puissance, le comportement des isolants.

### II-1-2-2-Représentation P(E): Courbe de Weibull:

Pour un temps de référence  $t$  donné, on ne prend en considération que les claquages qui ont lieu pour ce temps. L'équation (II-2) se réduit à la relation:

$$\log \ln \left( \frac{1}{1-P} \right) = b \log E + C^{te} \quad (\text{II-4})$$

Dans la représentation  $P(E)$  appropriée on obtient des droites de pente  $b$ . Le diagramme de la figure II-2 donne un exemple du tracé de Weibull  $P(E)$ .

Il existe de nombreux cas pour lesquels les courbes de Weibull ne sont pas des droites. Les points expérimentaux s'alignent alors sur deux ou trois segments de droite (figure II-2). Ils sont interprétés comme suit:

-Le segment  $a$ , correspond à une probabilité importante de claquage pour un champ faible. Il est attribué à des défauts du système.

-A l'inverse de  $a$ , le segment  $b$  traduit une probabilité quasiment nulle en dessous d'une certaine valeur de champ électrique  $E_0$ . Les courbes de Weibull dans le plan  $P(E-E_0)$  sont alors des droites. Cependant, l'existence d'un champ électrique en dessous duquel aucun claquage n'est possible reste une question controversée.

-Le segment  $c$ , lorsqu'il existe, est attribué à des ruptures anormales, quand l'échantillon est placé dans des conditions particulières.

### II-1-3-Utilisation pratique de la statistique de Weibull:

En pratique, on utilise deux types d'essai:

a-Les essais dits "statiques", pour lesquels une population d'échantillons est placée sous champ constant  $E_0$ , la distribution des temps de claquage est alors déterminée. La probabilité de rupture est donnée par:

$$P(E, V, t) = 1 - \exp - [ D(V) E_0^b t^a ] \quad (\text{II-5})$$

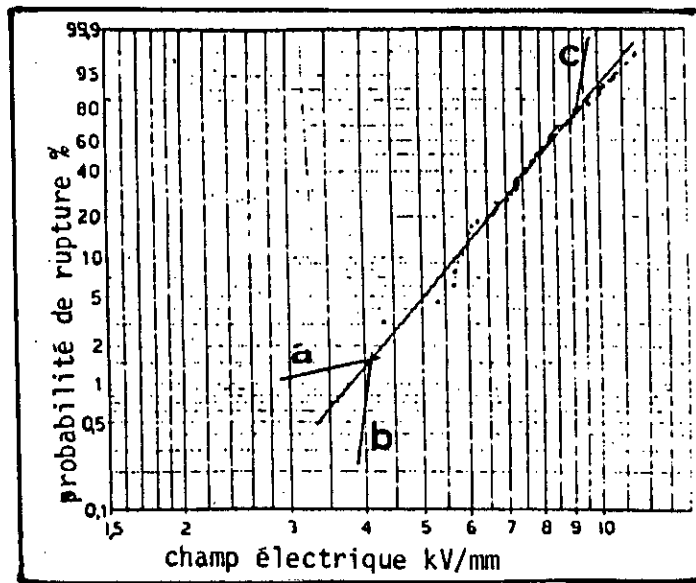
Les courbes  $\log \ln(1/1-P) = f(\log t)$  sont des droites de pente  $a$ . Pour différentes valeurs du champ électrique, on déduit des courbes tracées les constantes  $a$ ,  $b$ ,  $D(V)$ .

b-Les essais dits "dynamiques" où les échantillons sont soumis à

une rampe de tension  $dE/dt$  constante, à partir de zéro, la distribution des temps de claquage est alors déterminée. La probabilité de rupture devient:

$$P(E, V, t) = 1 - \exp\left[-D(V) \left(\frac{a}{a+b}\right) t^{a+b} \left(\frac{dE}{dt}\right)^b\right] \quad (\text{II-6})$$

Les courbes  $\log\ln(1/1-P) = \log(E)$  sont des droites de pente  $(a+b)$ . Pour différentes valeurs de la rampe de tension  $dE/dt$ , on représente sur une échelle log-log la variation  $dE/dt$  en fonction du champ de rupture. Le tracé d'une telle courbe est une droite de pente  $(a/a+b)$ . De ces deux tracés on peut déduire la valeur respectivement de  $a$  et  $b$ . La valeur de  $D$  est obtenue en substituant les valeurs de  $a$  et  $b$  dans l'équation (II-6) [57].



**Figure II-2:** Courbes de Weibull obtenues sur des films de polystyrène (temps de référence 1s). Les segments a, b, c sont des écarts à la loi de Weibull observables dans certains cas [53].

#### II-1-4-Signification physique de la statistique de Weibull:

La statistique de Weibull donne une description satisfaisante, bien qu'approximative, des phénomènes de rupture dans les isolants organiques, dans la limite des conditions expérimentales dans lesquelles elle a été testée.

Notons qu'aucune information se rapportant aux temps très courts et à l'épaisseur de l'échantillon n'a pu être obtenue. Cependant sur la base des théories nouvelles sur la rupture, certains auteurs proposent

une justification physique quant à son applicabilité.

Les paramètres de Weibull (a,b) auraient une signification physique en termes de propriétés mesurables du système [53]. D'après cette théorie, des fluctuations dans la valeur du champ et de la densité des porteurs existent même si le matériau est homogène. L'expression mathématique adéquate à ces fluctuations est celle du type Weibull.

## II-2-Modèles de durée de vie:

### II-2-1-Modèle de Puissance Inverse:

C'est le modèle le plus fréquemment utilisé dans les études de vieillissement électrique [51,58]. Car il permet de faire une analyse rapide des résultats expérimentaux. Il est donné par la relation:

$$t = K E^{-n} \quad (\text{II-7})$$

donc

$$\log t = \log K - n \log E \quad (\text{II-8})$$

où:  $t$  représente la durée de vie de l'isolant. C'est le temps au bout duquel se produit le claquage.

$E$  est le champ électrique appliqué.

$n$  est le coefficient d'endurance en tension du matériau. Il est déterminé par les données expérimentales.

$K$  est un paramètre déterminé par les données expérimentales.

La validité de l'application de ce modèle est vérifiée en portant les données expérimentales sur une échelle logarithmique ( $\log E$  en fonction de  $\log t$ ); si le résultat de cette représentation est une droite (équation II-8) alors le modèle peut être appliqué.

Une autre forme du modèle de puissance inverse est donnée en tenant compte de ce champ seuil. Ce dernier représente une valeur du champ électrique à partir de laquelle le vieillissement électrique se trouve remarquablement ralenti, ce qui correspond à une durée de vie tendant vers l'infini.

$$t = t_0 \left( \frac{E}{E_0} \right)^{-n} \quad \text{pour } E \geq E_0 \quad (\text{II-9})$$

où  $E_0$  est le champ électrique seuil et  $t_0$  est la durée de vie pour  $E=E_0$ .

Le MPI a été introduit pour la première fois par Peek en 1929. Il est empirique, et est retrouvé par la statistique de Weibull. Il constitue un moyen pratique pour l'analyse qualitative des isolants à savoir la détermination de leur endurance électrique  $n$  en tension. Plus la valeur de  $n$  est élevée meilleur est l'isolant [54].



### II-2-2-Modèle Exponentiel:

Après le MPI, qui est le plus utilisé dans l'étude du vieillissement électrique des isolants, vient le modèle exponentiel. La relation liant la contrainte électrique appliquée à la durée de vie est donnée par [51,59]:

$$t = C \cdot \exp(-kE) \quad (\text{II-10})$$

où: E est le champ électrique appliqué  
t est la durée de vie ou temps de claquage  
C et k des constantes déterminées à partir des données expérimentales.

Donc:

$$\log t = \log C - kE \quad (\text{II-11})$$

On vérifie la validité de ce modèle en portant sur une échelle semi-logarithmique les données expérimentales. Si le résultat de cette représentation est une droite (équation II-11) l'hypothèse d'utilisation de ce modèle est fondée.

Une autre forme de ce modèle est donnée, comme dans le cas du MPI, en tenant compte de l'existence d'un champ seuil, par [51]:

$$t = \frac{K_2}{E - E_0} \exp[-k_1(E - E_0)] \text{ pour } E > E_0 \quad (\text{II-12})$$

où:  $E_0$  est le champ électrique seuil  
 $k_1$  et  $k_2$  sont des constantes à déterminer à partir des données expérimentales.

Ce modèle est aussi empirique sans bases physiques. Il permet lui aussi une analyse rapide des résultats de vieillissement et une évaluation approximative des conditions de service.

### II-2-3-Modèle de Fallou:

Ce modèle propose une approche dans la détermination de la durée de vie des isolants soumis à l'action simultanée d'une contrainte électrique et thermique [51,59]. Cette action ne peut se déduire par simple sommation des actions de chaque contrainte agissant seule.

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

$$t = \exp\left(A_n + \frac{B_n}{T}\right) \quad (\text{II-13})$$

où:  $t$  est la durée de vie sous l'action de la température  $T$  à champ électrique  $E$  fixe.

$A_n$  et  $B_n$  sont des paramètres déterminés par les données expérimentales.

A chaque valeur du champ électrique  $E$  correspond des coefficients  $A_n$  et  $B_n$ . L'auteur suggère, en se basant sur des résultats expérimentaux, que ces coefficients varient linéairement avec le champ électrique. L'expression de la durée de vie devient alors:

$$t = \exp \left[ (a_0 + a_1 E) + \frac{(b_0 + b_1 E)}{T} \right] \quad (II-14)$$

où:  $t$  est la durée de vie sous l'action simultanée de la température et du champ électrique

$a_0$ ,  $a_1$ ,  $b_0$  et  $b_1$  sont des paramètres déterminés par les données expérimentales.

Le développement de l'équation (II-14), fait apparaître que la durée de vie, sous contraintes thermique et électrique, est le produit de trois combinaisons: électrique, thermique et électrothermique.

$$t = A \exp a_1 E \cdot \exp \frac{b_0}{T} \cdot \exp b_1 \cdot \frac{E}{T} \quad (II-15)$$

*électrique thermique électrothermique*

où:  $A = \exp a_0$  est obtenu à partir des données expérimentales.

Comme les deux modèles précédents, ce modèle est aussi une approche empirique pour la durée de vie des isolants sous contraintes thermique et électrique simultanées.

Les résultats obtenus à température ambiante ne vérifient pas le modèle. Aucune explication satisfaisante ne peut être donnée [59].

Dans ce modèle, l'auteur ne tient pas compte du champ seuil. Donc l'extrapolation aux champs très faibles doit être faite avec énormément de précaution.

#### II-2-4-Modèle de Ramu:

L'auteur considère que la contrainte électrique est le principal facteur de dégradation et que la contrainte thermique agit seulement comme catalyseur dans le processus de dégradation pour les deux contraintes combinées.

Cette analyse est faite à partir d'observations expérimentales à savoir: une augmentation de 10% de la contrainte électrique fait chuter la durée de vie d'un facteur supérieur à quatre, alors qu'une augmentation de 10% de la contrainte thermique fait chuter la durée de vie d'un facteur de deux [60].

Ce sera l'hypothèse de départ dans la modélisation de la durée de vie.

Cette modélisation est faite suivant une loi de puissance inverse [51,60] fonction de la température, avec un facteur multiplicatif de type Arrhénius qui représentera le vieillissement thermique.

La durée de vie est donnée par:[60]

$$L(T, E) = k(T) \left( \frac{E}{E_0} \right)^{-n(T)} \exp(-BDT) \quad (\text{II-16})$$

où:  $L(T, E)$  est la durée de vie de l'isolant soumis à l'action simultanée d'une température  $T$  et d'un champ électrique  $E$ .

$E_0$  est le champ en dessous duquel cesse le vieillissement électrique.

$B$  est la constante d'Arrhénius

$k(T)$  et  $n(T)$  sont des paramètres de la loi de puissance inverse en fonction de la température.

$$k(T) = \exp\left(k_1 + \frac{k_2}{T}\right) \quad \text{et} \quad n(T) = n_1 - n_2 DT \quad (\text{II-17})$$

$$\text{avec} \quad DT = \frac{1}{T_0} - \frac{1}{T}$$

$T_0$  est la température ambiante.

Tous les paramètres à savoir  $B$ ,  $k_1$ ,  $k_2$ ,  $n_1$  et  $n_2$  sont déterminés à partir des données expérimentales.

Ce modèle est empirique et n'a aucune base physique. Cependant l'auteur affirme que dans la gamme des temps de vieillissement testés, la durée de vie déterminée à partir du modèle est assez proche des résultats expérimentaux.

#### II-2-5-Modèle de Simoni:

D'après ce modèle le vieillissement se manifeste par la dégradation progressive des propriétés physiques. Le vieillissement serait donc une fonction de ces propriétés variant de zéro jusqu'à une valeur limite correspondant au claquage.

Le critère d'évaluation du vieillissement tient compte seulement des propriétés physiques dont la variation entraîne un claquage. Exemple la rigidité électrique qui est une propriété physique dont la diminution provoque le claquage [51].

La durée de vie dans ce modèle est définie comme étant le temps au bout duquel la propriété physique choisie atteint son point extrême. Le vieillissement sera alors à sa valeur limite et le système ne peut plus fonctionner [51,54].

#### II-2-5-1-Equations du vieillissement:

Le vieillissement A s'exprime par la fonction suivante [61]:

$$F(p) = A = \int_0^t R dt \quad (\text{II-18})$$

où: R est la vitesse de variation du vieillissement A donnée par:

$$R = dA/dt$$

$$p = P/P_0$$

P désigne la valeur de la propriété choisie pour l'évaluation du vieillissement au temps t, et P<sub>0</sub> la valeur de cette même propriété au temps initial.

La fonction "F" représente la "dégradation" ou "vieillissement total".

La vitesse de variation du vieillissement est fonction des contraintes appliquées au système.

$$R = R (s_1, s_2, \dots, s_n) \quad (\text{II-19})$$

d'où:

$$A = F(p) = \int_0^t R (s_1, s_2, \dots, s_n) . dt \quad (\text{II-20})$$

Cette équation (II-20) est appelée équation du vieillissement reliant n+2 variables à savoir les n contraintes, la propriété physique sélectionnée pour évaluer le vieillissement et le temps. Géométriquement, elle représente un espace à (n+2) dimensions appelé espace de vieillissement.

Lorsque p décroît et atteint sa valeur limite, p<sub>L</sub>, le temps représentera le temps de claquage L et le vieillissement A sera à sa valeur maximale A<sub>L</sub> donnée par:

$$A_L = F(p_L) = \int_0^L R (s_1, s_2, \dots, s_n) dt \quad (\text{II-21})$$

La représentation géométrique de cette équation (II-21) qui est l'équation de durée de vie à n+1 variables, constitue un espace à n+1 dimensions.

#### II-2-5-2-Cas de contraintes électro-thermique combinées:

A température élevée, l'application d'une contrainte électrique entraîne une diminution considérable de la durée de vie. Cette dernière, sous l'effet conjugué de ses deux contraintes est donnée par un modèle multiplicatif. En supposant le modèle d'Arrhénius valable pour la durée de vie thermique et le Modèle de Puissance Inverse valable pour la durée de vie électrique, la durée de vie électro-thermique sera [61]:

$$L = L_0 \exp[(-BDT)] \left(\frac{E}{E_0}\right)^{-(n-bDT)} \quad (\text{II-22})$$

L est la durée de vie sous l'action des deux contraintes E et T.

E est la contrainte électrique

T est la contrainte thermique  $DT = 1/\Theta - 1/\Theta_0$  où  $\Theta$  est la température absolue et  $\Theta_0$  la température ambiante.

$E_0$  est le champ électrique au dessous duquel il n'y a plus de vieillissement électrique.

$L_0$  est la durée de vie pour  $E \leq E_0$  à température ambiante.

B et b coefficients caractérisant le matériau.

n est le coefficient d'endurance en tension.

En notant  $n^* = n - bT$ , l'équation généralisée du vieillissement s'écrira:

$$\left(\frac{E_s}{E_{s0}}\right)^{n^*+1} = 1 - \left(\frac{E}{E_0}\right)^{n^*} \frac{t}{L_0} \exp(BDT) \quad (\text{II-23})$$

L'espace géométrique de cette équation est à quatre dimensions ce qui rend sa représentation impossible. Cependant son intersection avec le plan  $E_s = 0$ , c'est à dire le plan de claquage, donne la surface de durée de vie.

L'application de l'approche géométrique dans le cas de ces deux contraintes a permis le développement d'une nouvelle méthode: "méthode d'analyse combinée" [61]. L'idée de base de cette méthode est la prise en considération des trois graphes déduits de la surface de durée de vie à savoir:

a-Les courbes champ électrique E-durée de vie L à température constante.

b-Les intersections de la surface avec les plans à valeur de durée de vie fixe donnant des courbes champ électrique E-température T.

c-Les courbes durée de vie L-température T à champ constant.

De cette méthode, il ressort la représentation E(T) qui permet

d'évaluer l'endurance des matériaux sous l'action de deux contraintes combinées [54,61]. Dans le cas d'une contrainte unique électrique, la représentation nous permet d'évaluer la pente de la droite de durée de vie. Cette pente montre le comportement des matériaux soumis à cette contrainte et permet de les classer. De façon similaire, la pente des courbes  $E(T)$  à valeur de durée de vie fixe rend compte de l'aptitude du matériau à endurer l'action conjuguée de ces deux contraintes. La surface sous tendue par la courbe  $E(T)$  à une valeur de  $L$  comprend toutes les combinaisons  $(E,T)$  à des temps plus longs que la durée de vie  $L$ . Par conséquent, plus cette surface est large plus le comportement du matériau sous l'action des 2 contraintes est meilleur. D'où l'idée de définir un index d'évaluation de l'endurance des matériaux sous l'action de contraintes combinées: C'est le rapport de la surface sous tendue par la courbe  $E(T)$  à  $L$  constante sur la surface du triangle obtenue en joignant les points extrêmes de la courbe  $E(T)$  (figure II-3). Cet index appelé "index de compatibilité de contraintes" peut varier de 0 à 2. Si la valeur de cet index est supérieur à 1, cela signifie que les caractéristiques du matériau se trouvent modérément réduites sous l'action simultanée des 2 contraintes. Plus cette valeur se rapproche de 2 plus la réduction des caractéristiques est faible et le comportement sous l'action des 2 contraintes est meilleur.

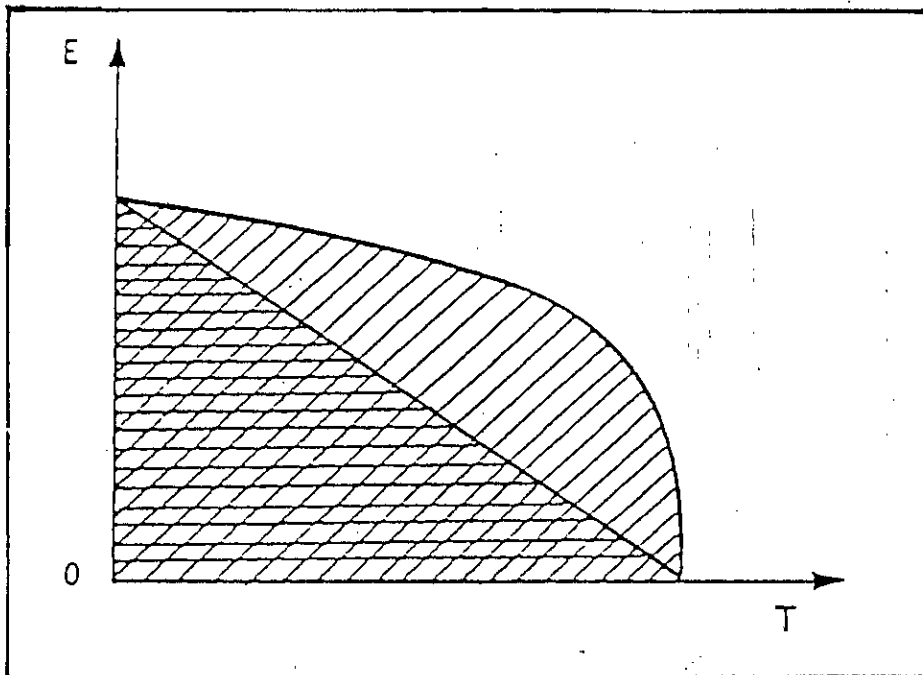


Figure II-3: Définition de l'indice de compatibilité de contraintes [61].

En conclusion, le modèle de Simoni est une approche géométrique pour l'évaluation de l'endurance des isolants électriques soumis à l'effet de plusieurs contraintes. Il est basé sur le fait que le processus de vieillissement est une quantité cumulative et sur le choix d'une propriété physique dont les variations avec le temps permettent d'évaluer le degré de vieillissement.

Ce modèle n'est pas une investigation sur les mécanismes de vieillissement mais vise plutôt à améliorer l'évaluation de l'endurance des systèmes soumis à plusieurs contraintes simultanées. Il a permis de définir un nouveau critère de classification des matériaux "l'index de compatibilité des contraintes".

#### II-2-6-Modèle de Montanari:

Ce modèle repose sur deux hypothèses:

La première est que le traitement statistique des données de vieillissement des isolants solides, soumis à l'action d'une contrainte électrique ou de deux contraintes électrique E et thermique T simultanément, se fait par la statistique de Weibull [62]. La fonction cumulative de distribution de cette statistique s'écrit:

$$F(t) = 1 - \exp\left[-\left(\frac{t}{\alpha}\right)^\beta\right] \quad (\text{II-24})$$

où t est le temps de claquage.  
 α est le paramètre d'échelle.  
 β est le paramètre de forme.

Les paramètres d'échelle α et de forme β ne sont pas constants mais fonction des contraintes appliquées:

$$\alpha = \alpha(E,T) \text{ et } \beta = \beta(E,T)$$

Vu que α est définie comme étant le temps correspondant à une probabilité de claquage de 63,2%, alors α(E,T) peut être exprimée par le modèle de durée de vie choisi. On prend l'équation II-24 comme modèle de durée de vie statistique pour les contraintes combinées.

La seconde hypothèse est que ce modèle s'applique aux matériaux présentant un champ électrique seuil, en d'autres termes des matériaux dont la représentation des résultats de vieillissement sur une échelle logarithmique (logE-logt) montre une linéarité sur une large gamme du temps puis une tendance vers un champ seuil [62], valeur pour laquelle la durée de vie tend vers l'infini.

Le modèle de durée de vie adopté est le MPI:

$$L = t_s \left( \frac{E}{E_s} \right)^{-n} \quad (\text{II-25})$$

où:  $L$  est la durée de vie sous contrainte électrique  $E$ .

$E_s$  est la contrainte électrique de référence à la température  $T$ ; c'est la valeur la plus élevée de la droite de durée de vie à la température  $T$ .

$t_s$  est le temps de claquage correspondant à la contrainte électrique  $E_s$  et à la température  $T$ .

$n$  est le coefficient d'endurance en tension à la température  $T$ .

L'auteur [62] attribue la courbure ascendante dans la représentation de la durée de vie sur une échelle logarithmique à une variation du coefficient d'endurance en tension  $n$ :

$$n = \frac{n_c}{\left( 1 - \frac{E_s - E}{E_s - E_T} \right)^\theta} \quad (\text{II-26})$$

où:  $E_T$  est le champ électrique seuil à la température  $T$ .

$n_c$  est le coefficient d'endurance initial:  $n_c = n(E_s, t_s)$ , il dépend de la température.

$\theta$  est le paramètre de forme.

Comme chaque matériau tend vers le champ seuil d'une façon "qui lui est propre", on a introduit le paramètre  $\theta$ . Même dans le cas où le rapport  $E_T/E_s$  est identique pour différents matériaux, leurs courbes de durée de vie peuvent être différentes. Donc pour un même matériau, la manière de tendre vers le champ seuil peut varier avec la température

$\theta = \theta(T)$ .

L'équation de durée de vie donnée par ce modèle est donc:

$$L = t_s \left( \frac{E_s}{E} \right)^n \quad (\text{II-27})$$

Ce modèle est appelé "Modèle de Puissance Inverse à Seuil" (IPTM: Inverse Power Threshold Model). Les courbes de durée de vie qui en découlent ont le même point de départ que celui donné par l'équation (II-25), cependant, lorsque le champ  $E$  tend vers le champ seuil  $E_T$  les courbes données par l'équation (II-27), tendent vers une durée de vie infinie, avec une forme dépendant de la valeur de  $\theta$ .

L'équation (II-27) n'est valable que pour  $E > E_T \geq E_0$  où  $E_0$  est la valeur limite de la contrainte électrique au dessous de laquelle la durée de vie dépend uniquement de la température. Car pour  $E \leq E_0$  le vieillissement électrique peut être négligé et la contrainte électrique est



considérée comme la "meurtrière" qui provoque le claquage dans un matériau vieillissant thermiquement [62].

Le modèle de durée de vie obtenu peut être considéré comme l'expression du paramètre d'échelle de la fonction cumulative de la distribution de Weibull  $\alpha(E,T)$ . Le modèle statistique de durée de vie est obtenu en substituant l'équation (II-27) dans l'équation (II-24):

$$F(t, E, T) = 1 - \exp\left[-\frac{t}{t_s} \left(\frac{E}{E_s}\right)^n\right]^\beta \quad (\text{II-28})$$

L'estimation du temps de claquage pour chaque probabilité  $p$  peut être déduite, une fois les paramètres du modèle décrit par l'équation (II-28) définis, moyennant l'expression:

$$t_p = t_s \left(\frac{E_s}{E}\right)^n \left[\ln\left(\frac{1}{1-p}\right)\right]^{\frac{1}{\beta}} \quad (\text{II-29})$$

dans laquelle le paramètre de forme  $\beta(E,T)$  est donné par:

$$n = \frac{\gamma}{\beta} \quad (\text{II-30})$$

où:  $\gamma$  est le facteur de dispersion en champs de la statistique de Weibull obtenu lors d'un claquage à temps constant.

$\beta$  le paramètre de forme correspondant au paramètre de dispersion en temps de la statistique de Weibull appliquée au claquage à champ constant.

L'auteur valide cette relation pour la partie linéaire de la courbe de durée de vie pour laquelle la valeur de  $n$  est pratiquement égale à  $n_c$ . D'autre part, comme à proximité du champ seuil ( $E_T$ ) la fiabilité tend vers 1, les courbes de durée de vie tendent vers  $E_T$ , la définition du paramètre de forme  $\beta$  n'a plus de sens. En tenant compte de toutes ces considérations, l'auteur considère le paramètre de forme  $\beta(E,T)$  constant avec le champ, c'est à dire:

$$\beta(E, T) = \beta_c(T) \quad (\text{II-31})$$

où  $\beta_c$  est la moyenne des valeurs de paramètre de forme obtenues à chaque test de durée de vie (test effectué à champ fixe) à la température  $T$ .

L'estimation des autres paramètres  $t_s$ ,  $n_c$ ,  $E_T$ ,  $\Theta$  est faite à partir des résultats expérimentaux moyennant une méthode de régression linéaire pour le logarithme des temps de claquage de chaque test de durée de vie.

La validité du modèle proposé a été vérifiée par l'auteur sur des résultats expérimentaux de vieillissement de câbles de polyéthylène

réticulé [62]. Ces résultats ont vérifié les hypothèses de l'auteur:

- valeur de  $\beta_c$  constante avec le champ.
- champ seuil diminuant avec la température.
- courbe de durée de vie tendant à coïncider à partir du champ seuil pour n'importe quelle probabilité.

Cependant, l'application de ce modèle qui comprend cinq variables indépendantes:  $t_c$ ,  $n_c$ ,  $E_T$  et  $\beta$ , nécessite un grand nombre de données expérimentales afin d'estimer de la manière la plus exacte possible le paramètre aussi important qu'est le champ seuil [63].

#### II-2-7-Modèle de Crine:

Ce modèle est basé sur deux hypothèses:

La plupart des processus de vieillissement des diélectriques sont activés thermiquement.

Plusieurs propriétés de différents matériaux varient avec l'énergie libre d'activation  $\Delta G$  et non pas avec l'énergie apparente d'activation  $E_a$  [64]. Par conséquent, l'entropie d'activation  $\Delta S$  qui n'apparaît pas dans l'équation d'Arrhénius ne peut être négligée.

Ces deux points justifient l'utilisation de la théorie de Eyring [65]. D'après cette théorie une énergie libre d'activation  $\Delta G$  est requise lors d'un processus activé thermiquement.

$$\Delta G = \Delta H - T\Delta S \quad (\text{II-32})$$

où  $\Delta H$  désigne l'enthalpie d'activation,  
T la température absolue,  
 $\Delta S$  l'entropie d'activation.

Le temps  $t$  nécessaire pour traverser la barrière d'énergie à l'équilibre est exprimé par:

$$t = \frac{h}{kT} \exp\left(\frac{\Delta G}{kT}\right) = \frac{h}{kT} \exp\left(\frac{\Delta H}{kT}\right) \exp\left(-\frac{\Delta S}{kT}\right) \quad (\text{II-33})$$

où  $k$  et  $h$  désignent respectivement les constantes de Boltzman et Planck.

L'auteur propose que le temps donné par l'équation (II-33) peut décrire les variations du temps de claquage ou de l'inverse de la fréquence maximale de relaxation en fonction de la température [66]. Sous l'action d'une contrainte  $\sigma$ , la hauteur de la barrière est réduite, le temps devient alors:

$$t = \frac{h}{kT} \exp\left(\frac{\Delta G}{kT}\right) \operatorname{csch}\left(\frac{\Delta V \cdot \sigma}{2kT}\right) \quad (\text{II-34})$$

où  $\Delta V$  est le volume d'activation.

#### II-2-7-1-Application au vieillissement électrique:

Pour un vieillissement électrique, le temps de claquage  $t$  s'exprime par:

$$t = \frac{h}{kT} \exp\left(\frac{\Delta G}{kT}\right) \operatorname{csch}\left(\frac{e\lambda E}{kT}\right) \quad (\text{II-35})$$

où  $E$  est le champ électrique appliqué.

$e$  désigne la charge électronique.

$\lambda$  la largeur de la barrière ou libre parcours moyen des porteurs.

A champ élevé l'équation (II-35) devient:

$$t = \frac{h}{kT} \exp\left(\frac{\Delta G - e\lambda E}{kT}\right) \quad (\text{II-36})$$

Ceci s'exprime par l'existence d'un champ critique  $E_c$  au dessus duquel le temps de claquage varie de manière exponentielle avec la contrainte électrique.

En représentant l'équation (II-36) à partir des résultats expérimentaux, on en déduit les valeurs de  $\Delta G$  et  $\lambda$ :

$$\ln t = \ln \frac{h}{kT} + \frac{\Delta G}{kT} - \frac{e\lambda}{kT} E \quad (\text{II-37})$$

Il devient possible de calculer les temps de claquage correspondant aux champs faibles ( $E < E_c$ ) à partir de l'équation (II-35), puisque les valeurs de  $\Delta G$  et  $\lambda$  ont été déterminées à partir du régime exponentiel ( $E > E_c$ ). La comparaison entre ces temps et ceux déterminés expérimentalement à des champs faibles a montré que la distance  $\lambda$  n'est pas constante dans cette région, mais décroît lorsque  $E$  diminue [67] (figure II-4).

En se basant sur ces résultats, on suggère que le processus de vieillissement n'est pas le même dans les deux zones délimitées par le champ critique  $E_c$ .

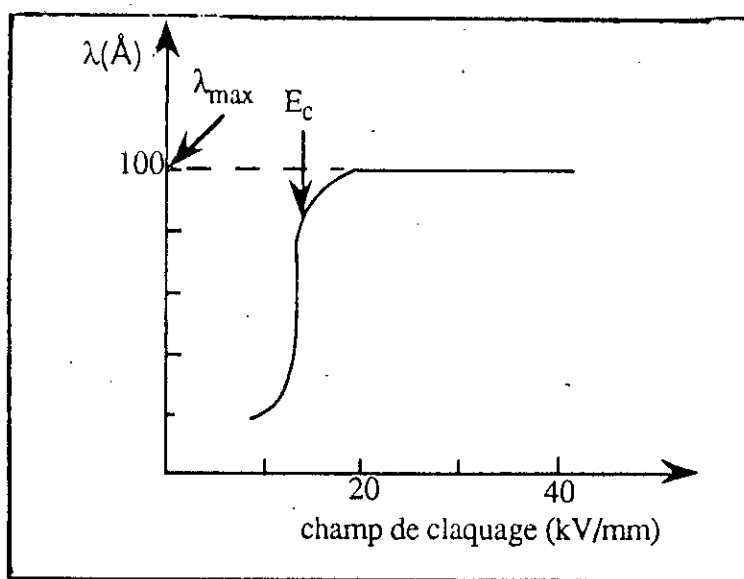


Figure II-4: Dépendance du paramètre  $\lambda$  du champ pour des câbles de PR [67].

#### II-2-7-2-Interprétation du phénomène de vieillissement électrique:

L'énergie nécessaire pour rompre des liaisons intramoléculaires est très élevée ( $>4\text{eV}$ ); la rupture de telles liaisons par collision électronique paraît improbable. Ce qui n'est pas le cas des faibles liaisons intermoléculaires (dont la plupart sont des liaisons de Van Der Waals) qui requièrent une plus faible énergie ( $\approx 0,1$  à  $0,2$  eV) [64,68], et qui par application d'une contrainte importante peuvent être déformées. D'autres travaux ont montré que des champs électriques élevés entraînent une déformation électromécanique significative dans bon nombre de polymères. Celle-ci semble être attribuée à la formation d'une arborescence électrique. L'application d'une contrainte électrique peut engendrer une augmentation locale du champ et par conséquent un échauffement local des chaînes de polymères. Il en résultera à ces endroits une rupture de segments qui amorcera une submicrocavité de dimension de 20 à 100 Å dans la plupart des polymères. Ce processus de vieillissement est irréversible. Des submicrocavités ont été détectées par des mesures S.A.X.S ("Small Angle X Rays Scattering") faites sur du PR vieilli sous un champ de 20 kV/mm.

Partant de ces hypothèses, l'auteur associe la taille de ces submicrocavités à  $\lambda$ , et leur formation à des champs supérieurs à  $E_c$ . La valeur de  $E_c$  [68] peut être évaluée approximativement comme suit:

L'énergie de cohésion du matériau  $E_{\text{coh}}$  est attribuée à la durée de vie si cette dernière dépend de la rigidité des liaisons de Van Der

Waals. Effectivement  $E_{coh}$  est une mesure des forces intermoléculaires et en particulier des forces de Van Der Waals [69]. On considère qu'il y a rupture si le travail de déformation de la barrière d'énergie  $W = e\lambda E$  est égal ou supérieur à  $E_{coh}$ . La valeur approximative du champ critique  $E_c$  est donnée par:

$$E_c \sim \frac{E_{coh}}{e\lambda_{max}} = \frac{\Delta V_{vap} - kT}{e\lambda_{max}} \quad (II-38)$$

où  $\Delta V_{vap}$  est la chaleur de vaporisation.

Il existe une corrélation entre la morphologie du diélectrique et la largeur maximale de la barrière .

En effet, les segments subissant les déformations sont localisés dans la partie amorphe du polymère, vu que les chaînes situées dans la partie cristalline sont difficilement déformables. La longueur maximale de ces segments est par conséquent égale à la longueur de la partie amorphe. La taille de ses submicrocavités est au départ contrôlée par la morphologie du diélectrique (en particulier le rapport cristallo-amorphe), avec le temps leur nombre augmente, pour former éventuellement, en s'unissant des microcavités qui pourront donner lieu à des cavités dont l'ordre de grandeur est du micron. Les cavités à leur tour peuvent être le siège de décharges partielles. Le processus de formation de ses submicrocavités est irréversible car elles persistent même après suppression du champ avant la rupture.

En résumé, le modèle de Crine est basé sur une théorie physique: C'est la théorie de Eyring. L'auteur a montré que son modèle s'applique à différents "types de vieillissement":

- vieillissement électrique [67,68].
- vieillissement thermique [64].
- vieillissement mécanique [65].

Il est entendu aussi que quelle que soit la contrainte fondamentale de vieillissement, le temps de claquage donné par ce modèle tient compte des autres paramètres. En effet, le terme de Gibbs  $\Delta G$  (variation de l'énergie libre) tient compte des effets de morphologie du diélectrique, de l'environnement et de la température.

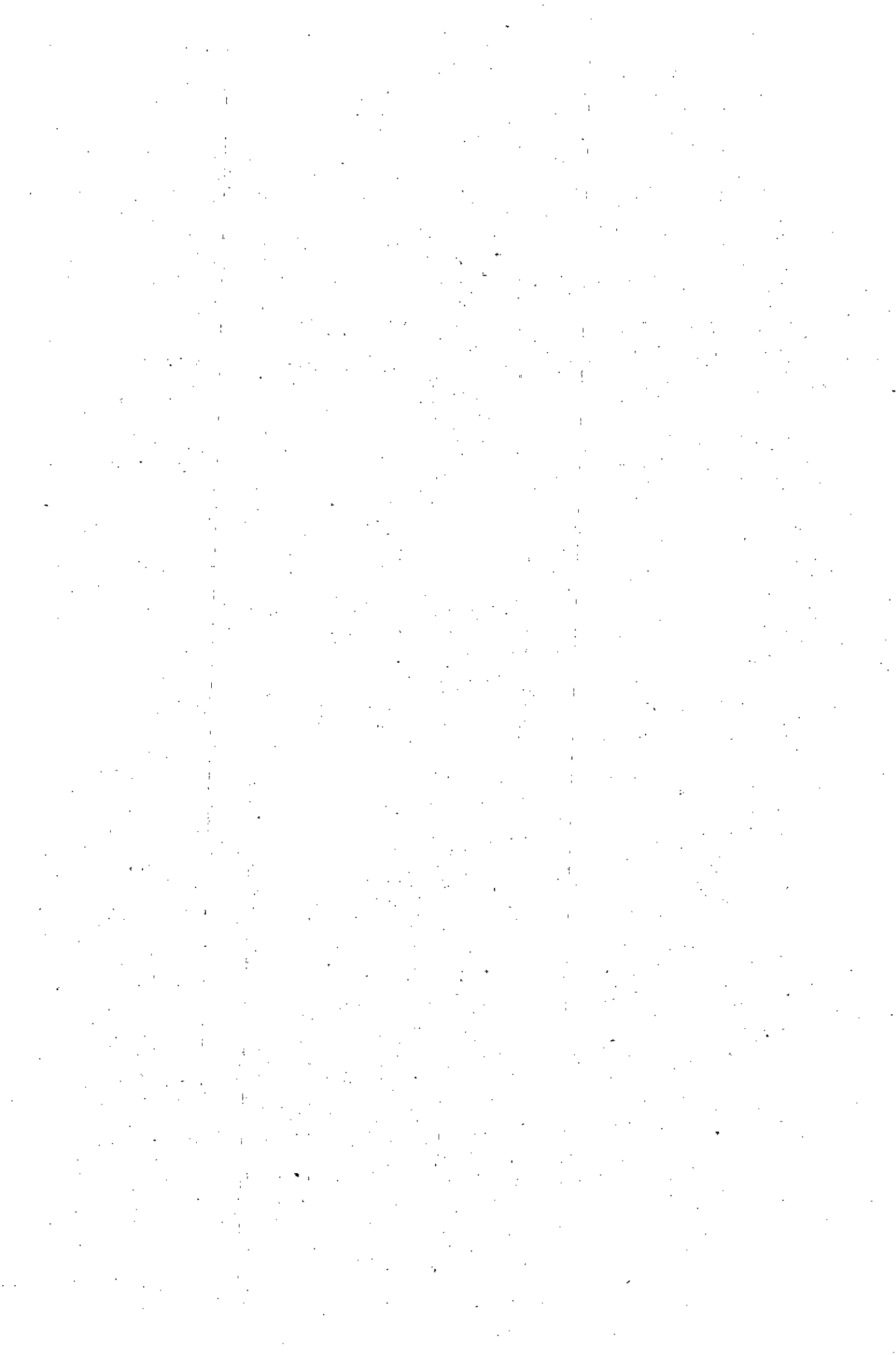
L'auteur attribue la formation de ses submicrocavités à une augmentation locale du champ électrique qui entraîne un échauffement local des chaînes du polymère. Ce qui équivaut à dire que l'auteur considère le champ non uniforme dans le polymère.

S.M.Gubanski [70] a appliqué ce modèle aux données de vieillissement de films de PET et il lui a donné satisfaction. Car il a

trouvé des valeurs de  $\Delta G$  et  $\lambda$  presque similaires, indépendamment du type de champ de vieillissement (continu et alternatif). Tout comme il affirme que les valeurs de  $\Delta G$  déterminées en appliquant le modèle de Crine sont en accord avec les énergies d'activation données par la méthode du TSD (Thermally Stimulated Depolarisation Currents ou TSDC) sur le même type d'échantillons vieillis.

**En conclusion,** la statistique de Weibull est utilisée dans le but d'évaluer la durée de vie du PVC vieilli thermiquement, et de vérifier la dispersion de nos résultats dans le cas de la mesure des temps d'initiation de l'arborescence électrique dans le Polyéthylène. Le modèle de Crine a été choisi (les raisons de ce choix sont exposées au chapitre V) comme modèle de durée de vie. Il rend compte de la variation de l'énergie libre  $\Delta G$ , caractérisant la morphologie du diélectrique, l'environnement et la température, et celle de la taille des submicrocavités associée à  $\lambda$ .

**CHAPITRE III**  
**"TECHNIQUES EXPERIMENTALES"**





Dans ce chapitre, nous présentons, d'une part deux techniques d'investigations qui permettent d'envisager d'importants progrès dans la compréhension des processus d'incubation des arborescences électriques dans les matériaux polymériques. Quelques résultats seront présentés et commentés dans le cas particulier du polyéthylène [70]. D'autre part, deux techniques d'évaluation du vieillissement thermique du Polychlorure de Vinyle (PVC), ainsi que l'influence de ce vieillissement sur la rupture par arborescences électriques de ce matériau (PVC).

### III-1-Mise en oeuvre des échantillons:

Les essais d'arborescence sont basés sur des tests à aiguilles. Pour une tension d'alimentation donnée, le champ électrique est principalement contrôlé par le rayon de courbure de l'électrode en pointe [5].

Dans le cas du Polyéthylène, nous avons adopté dans une étude préliminaire la configuration double aiguille dans laquelle l'une des électrodes présente un rayon de courbure de 500 microns, et l'autre un rayon de courbure de 3 microns. Cette dernière est donc le site d'initiation de l'arborescence, l'intensité du champ y étant maximale. Tandis que pour le Polychlorure de Vinyle, nous avons opté pour la configuration pointe-plan, afin d'éviter les problèmes de dissymétrie axiale. L'électrode initiatrice de l'arborescence présente un rayon de courbure de 3 microns.

Les aiguilles utilisées sont en acier, elles proviennent de la société japonaise Ogura-Jewel. Elles font l'objet d'une norme, car elles sont utilisées par de nombreuses équipes de recherche. Moyennant un microscope électronique, on contrôle systématiquement le rayon de courbure et l'état de toutes les électrodes utilisées. La figure III-1, illustre l'état des aiguilles avant et après nettoyage.

### III-1-1-Mise en oeuvre des éprouvettes:

Les mécanismes régissant la phase d'initiation de l'arborescence sont fortement liés à l'état de contact entre l'électrode métallique en pointe et le polymère [4,5]. Le problème majeur réside dans l'obtention d'échantillons ne contenant pas de cavités gazeuses en pointe: dans ce cas, ce sont les décharges électriques qui gouvernent la transition à l'arborescence. Un bon contrôle des conditions de moulage est par conséquent indispensable à la réalisation d'échantillons exempts de cavités gazeuses.

Nos éprouvettes de Polyéthylène et de Polychlorure de Vinyle ont la forme parallélépipédique (figure III-2). L'éprouvette baigne dans de l'huile contenue dans la cellule d'essai. L'huile utilisée est la Rhodorsil (silicone incolore, référence huile 47). Elle possède les propriétés suivantes:

- très bonne stabilité thermique ;
- bonnes propriétés diélectriques;
- absence de vieillissement sous l'action des agents atmosphériques;
- bonne résistance à l'oxydation;
- variation de la viscosité en fonction de la température plus faible que dans le cas des huiles non silicones.

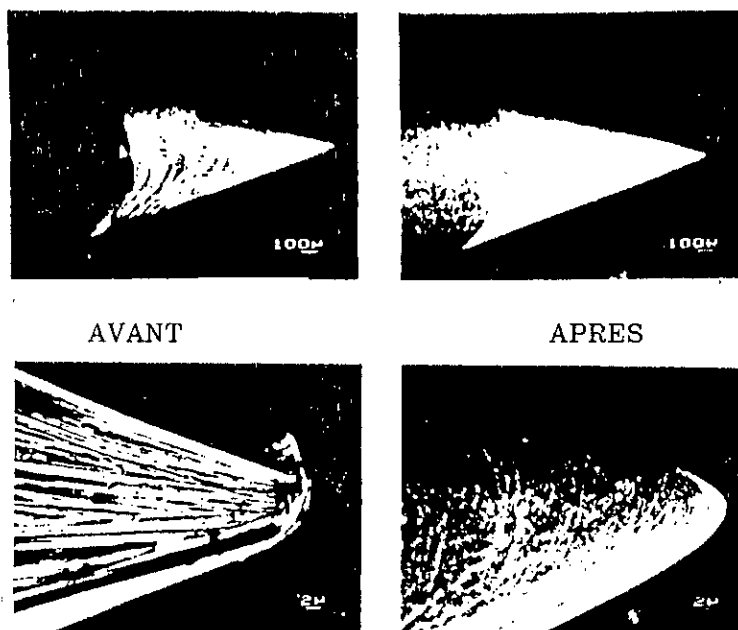


Figure III-1: Etat des aiguilles avant et après nettoyage [72].

### III-1-2-Mode d'insertion des aiguilles dans le polymère:

La phase d'initiation de l'arborescence est aussi régie par le mode d'insertion des aiguilles dans le polymère. Il existe plusieurs modes d'insertion des aiguilles dans le matériau:

- 1-enfoncement à froid de l'aiguille dans le polymère [73].
- 2-effectuer un recuit de l'éprouvette après insertion à froid des aiguilles [73].
- 3-enfoncement progressif sous contrôle thermique très strict afin d'éviter les fractures [74].
- 4-moulage des électrodes: méthode développée au LGE/UPS de Toulouse.

C'est cette dernière méthode qui a été adoptée pour préparer nos éprouvettes dans le cas du polyéthylène. Car elle permet d'obtenir un très bon contact entre le polymère et l'électrode.

Notre choix s'est fixé sur le moulage par compression étant donné

que l'injection présente certains inconvénients:

-lors de l'injection de l'isolant dans le moule froid, il se fige presque instantanément au contact du moule, ce qui est à l'origine de ce qu'on appelle "la peau de moulage" provoquant ainsi la création de contraintes résiduelles (contraintes de traction au coeur et de compression dans la peau) capables de modifier les caractéristiques électriques des parties du matériau où elles existent [75].

-en effectuant l'injection sous pression, ceci occasionne probablement, lors de l'arrivée d'un courant de matière, une détérioration mécanique des électrodes, plus précisément leur extrémité [5].

La méthode d'insertion de l'aiguille dans le Polychlorure de Vinyle consiste à enfoncer progressivement l'aiguille dans le matériau après avoir effectué au préalable un recuit. Le recuit présente l'avantage de ramollir le matériau facilitant ainsi l'enfoncement de l'aiguille.

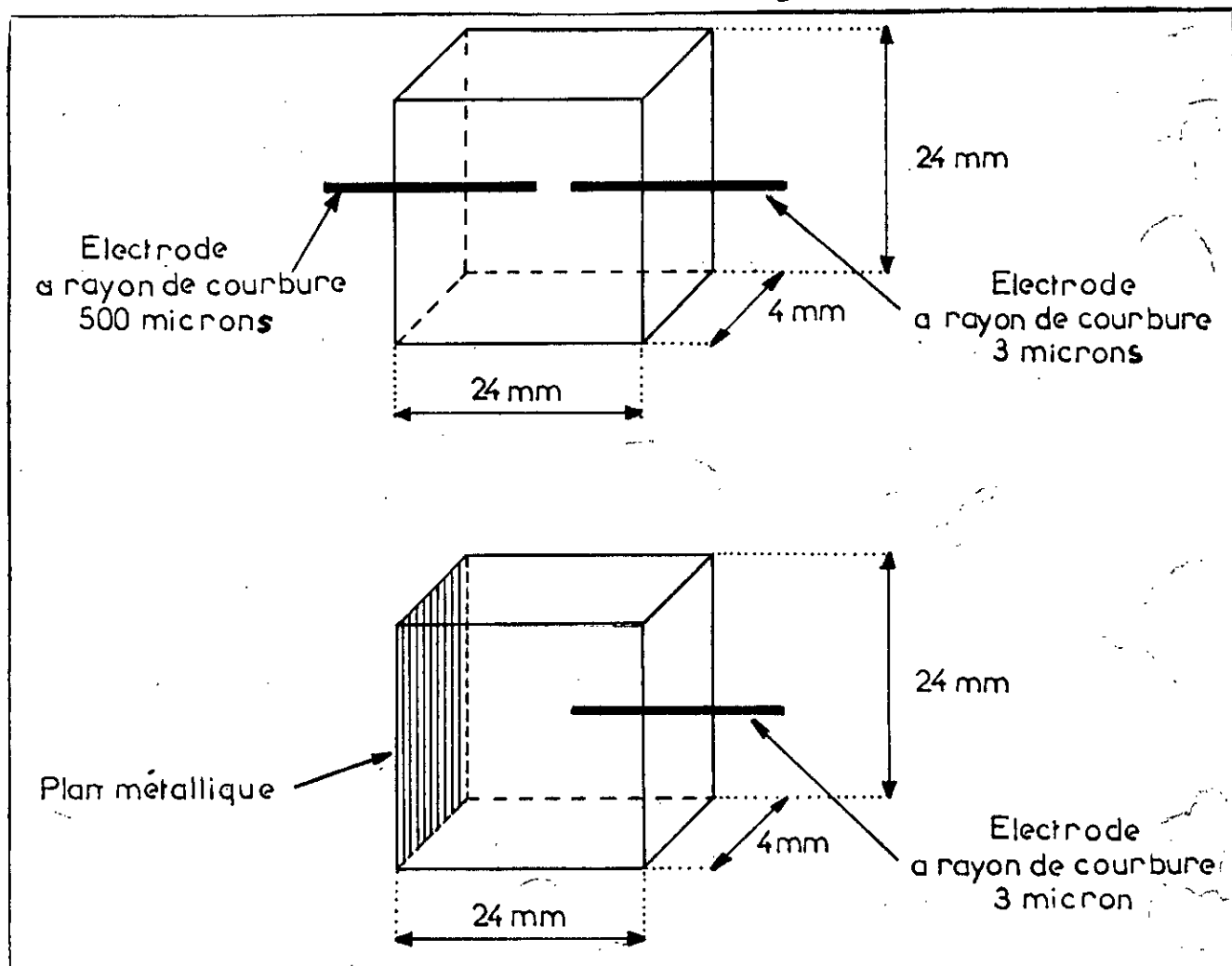


Figure III-2: Configuration des électrodes et dimension des échantillons de Polyéthylène et de Polychlorure de Vinyle.

### III-1-3-Mode opératoire du moulage:

Le moule utilisé pour la réalisation de nos éprouvettes en configuration double aiguille pour le Polyéthylène et pointe-plan pour le Polychlorure de Vinyle, est proche de celui utilisé par Perret et Recoupe [76] pour une insertion mécanique.

Le dispositif est composé de deux hémisphères de 30 mm d'épaisseur usinées dans de l'acier. Le serrage entre ces deux parties est assuré par boulonnage extérieur. La partie centrale du moule est évidée suivant les dimensions 25 mm x 25 mm. Le vide ainsi réalisé sert de réceptacle à la matière recouvert de part et d'autre de plaques métalliques permettant la compression de la matière. Chaque hémisphère est percé d'un trou fileté dans lequel sera vissé un canon. Chaque canon est fileté intérieurement et extérieurement (un seul canon est représenté à la figure III-3). Une vis tournant dans le filetage intérieur comporte un trou axial dans lequel est introduite l'aiguille [5].

Lors du moulage du Polyéthylène, nous réglons la distance interélectrode avant de disposer, de part et d'autre des aiguilles, deux plaques de Polyéthylène coupé suivant les dimensions du moule (25mm x 25mm). Nous introduisons alors le moule dans une étuve portée à la température de 160°C pendant une heure. Le moule est comprimé à l'aide d'un poids en guise de presse. A la sortie de l'étuve, le moule est pressé mécaniquement et laissé refroidir durant 30 mn. Après démoulage, nous vérifions sous microscope (grossissement X 5) la distance interélectrode, c'est cette dernière mesure qui sera prise en considération, la coaxialité des aiguilles (nous ne tiendrons compte lors de nos essais d'initiation de l'arborescence que des éprouvettes dont les aiguilles sont coaxiales), ainsi que le contact aiguille-polymère afin de s'assurer qu'il n'y a aucun décollement au niveau de la pointe.

Le processus de réalisation des éprouvettes de Polychlorure de Vinyle est le suivant: une aiguille est insérée dans le filetage intérieur de l'un des canons, une plaque de PVC est introduite dans le réceptacle du moule, ce dernier est placé dans une étuve portée à la température de 160°C et est comprimé par un poids. Au bout d'une heure le moule est retiré de l'étuve. Nous procédons alors à l'enfoncement très progressif de l'aiguille dans le PVC de telle façon que la distance entre la pointe et le plan soit de 2 mm. Etant donné que le PVC est opaque, nous ne disposons d'aucun moyen de vérification de la distance interélectrode finale (donc nous prenons en considération la distance fixée initialement), ni de l'état de contact de la pointe avec le matériau. C'est l'un des inconvénients de travailler sur des matériaux opaques du fait de leur épaisseur importante (quelques millimètres) et de l'adjonction de colorants et de pigments.

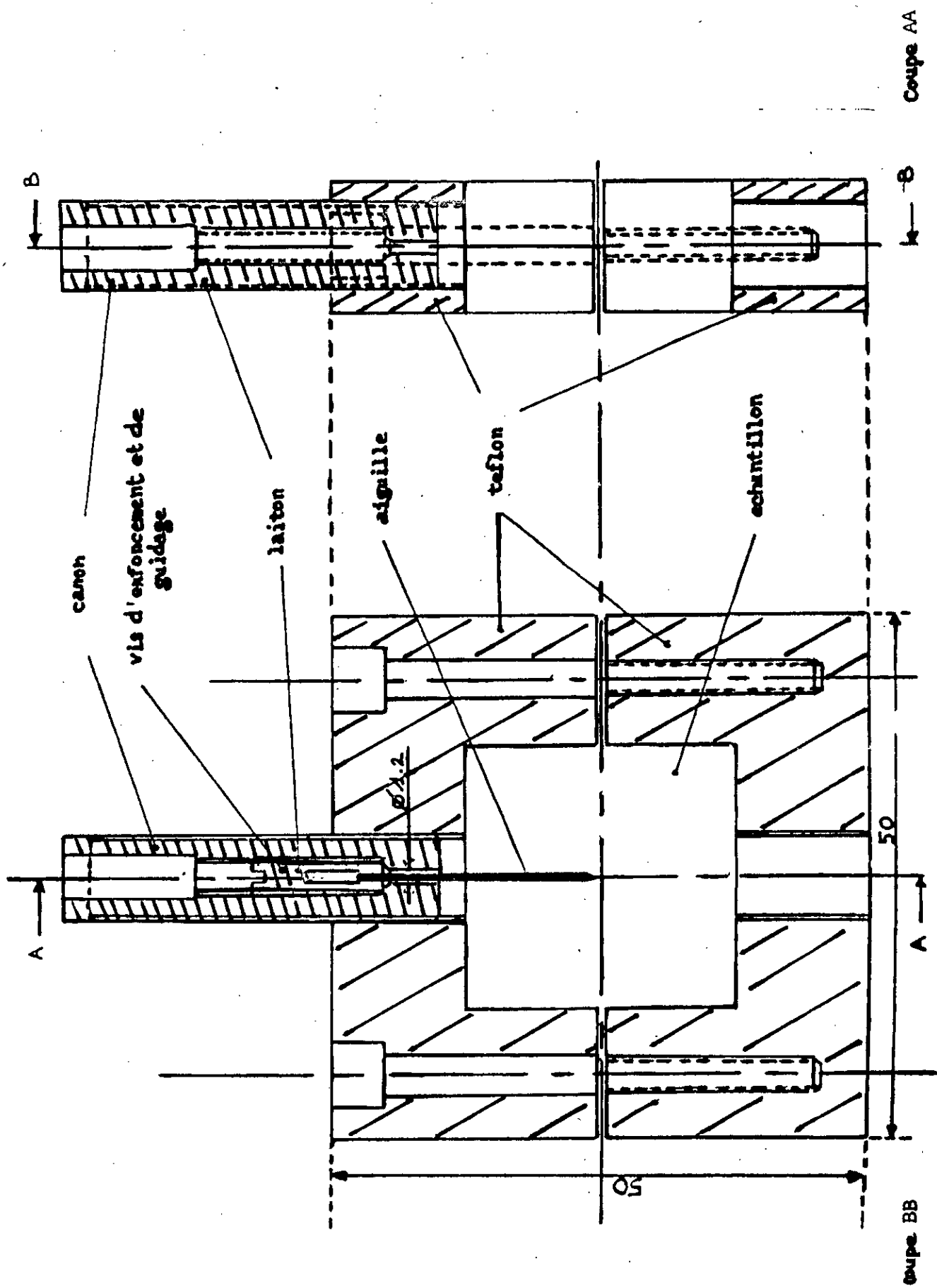


Figure III-3: Dispositif d'enfoncement et de guidage des électrodes [5]

### III-2-Les dispositifs d'essais:

Des techniques d'investigations sont utilisées dans le but:

\*Pour le Polyéthylène:

-de mettre au point une méthodologie pour la mesure des temps ou tensions d'incubation des arborescences électriques sous rampe linéaire de tension et sous tension constante.

-de vérifier l'existence d'un champ critique pour le vieillissement électrique du matériau.

\*Pour le Polychlorure de Vinyle:

-d'étudier la variation de la température de transition vitreuse en fonction du temps de vieillissement.

-de déterminer les niveaux de tension et des temps de rupture en fonction des temps de vieillissement et de corrélérer éventuellement les résultats de mesures aux propriétés physico-chimiques mesurées ou déterminées antérieurement.

-de corrélérer éventuellement les tensions et les temps de rupture à la température de transition vitreuse.

Ces différentes techniques participent à un programme plus vaste sur l'étude du vieillissement électrique et thermique des isolations polyéthylène et polychlorure de vinyle des câbles de transport d'énergie. C'est à cette étude que nous apportons notre modeste contribution.

#### III-2-1-Détermination des temps d'incubation:

Les essais d'initiation des arborescences électriques dans le polyéthylène ont été effectués à l'aide du dispositif de la figure III-4, constitué des éléments suivants:

-un générateur de rampe de tension (G) dont la vitesse est réglable.

-un transformateur haute tension (THT) pour le circuit exempt de décharges partielles, délivrant une tension variant de 3 à 30 kV<sub>eff</sub>.

-un voltmètre (V) pour relever le niveau de tension.

-une cellule usinée dans du plexiglass, facilitant la visualisation du phénomène. Les contacts entre les canons du dispositif de maintien des aiguilles et les entrées de la cellule sont réalisés par soudure.

-un microscope optique (M) à grand champ est utilisé pour la visualisation du phénomène. L'appareil est pourvu d'un dispositif d'éclairage permettant l'observation de l'objet par réflexion ou par transmission. Toutes les parties du microscope susceptibles de se charger par influence sont mises à la terre. Le grossissement utilisé lors de l'observation du phénomène est x 5. C'est le seul grossissement qui permet de visualiser les faibles distances interélectrodes, cependant il présente l'inconvénient de ne pouvoir conserver une distance frontale importante. L'adaptation d'un appareil de prises de vues se fait au moyen d'une bague de raccordement disposée au sommet du microscope. L'appareil de prises de vues est soit du type appareil photographique soit une caméra cinématographique (Ca).

-une capacité (Cp) de valeur 1500pF doit supporter la totalité de la tension alternative sans être le siège de décharges partielles mais qui permet, par sa faible impédance en haute fréquence, de capter la totalité des impulsions liées au phénomène de décharge [5].

-un mesureur de décharges partielles-type 316- est relié à la borne haute tension par l'intermédiaire de la capacité Cp.

### III-2-2-Mesure des tensions seuils:

L'idée de base est l'existence probable d'un champ électrique, dit champ  $E_c$ , au dessus duquel des porteurs de charge sont injectés massivement dans le diélectrique [77]. La relaxation de ces porteurs dissipe de l'énergie dans le diélectrique et la structure du polymère évolue.

L'existence du champ critique serait liée à un changement abrupt de la mobilité des porteurs: En dessous de  $E_c$ , la mobilité est faible (transport par hopping), et peut être négligée. Au dessus du seuil, les porteurs sont injectés dans la bande de conduction de l'isolant et possèdent une mobilité beaucoup plus élevée ( $\approx 1\text{cm}^2/\text{V.s}$ ) [78]. En pratique c'est une tension que l'on mesure. Elle est reliée à ce champ ( $E_c$ ) par la géométrie du site à partir duquel se produit l'injection [78].

La charge totale aux bornes d'une éprouvette ayant une configuration double pointe, pour une tension V appliquée inférieure à la tension critique  $V_c$ , peut s'écrire:

$$Q_t = Q_c + Q_p \quad (\text{III-1})$$

- où:  $Q_c$ : charge capacitive résultant du produit de la tension appliquée par la capacité géométrique de l'échantillon.  
 $Q_p$ : charge de polarisation liée à la dépendance fréquentielle de la constante diélectrique  $\epsilon_r(\omega)$ .

Lorsque la tension appliquée  $V$  est supérieure à  $V_c$ , l'expression de la charge totale devient alors:

$$Q_t = Q_c + Q_p + Q_{ce} \quad (\text{III-2})$$

où le terme ajouté  $Q_{ce}$  représente la charge d'espace injectée ainsi que les charges images induites sur l'électrode injectante.

Afin de déterminer cette quantité  $Q_{ce}$  dont l'ordre de grandeur est extrêmement faible par comparaison avec  $Q_c$  ( $Q_c/Q_{ce} \approx 10^4$ ), un montage adéquat a été réalisé au LGE et est en cours d'expérimentation [77]. Il permet la compensation de la charge capacitive et de la charge polaire, la charge injectée apparaissant comme une forte non linéarité de la charge en fonction de la tension. Sur le plan théorique, on aurait donc:

$$\begin{aligned} Q_t &= 0 & \text{si} & \quad V < V_c \\ Q_t &= Q_{ce} & \text{si} & \quad V > V_c \end{aligned} \quad (\text{III-3})$$

### III-2-3-Détermination des tensions et des temps de rupture:

Les essais de rupture par arborescences électriques des éprouvettes de PVC ont été effectués à l'aide du dispositif présenté à la figure III-5 qui comporte les éléments suivants:

- un autotransformateur permettant de fixer la tension par palier constant.
- un voltmètre (V) pour relever le niveau de tension.
- un transformateur haute tension (THT) exempt de décharges partielles délivrant 3 à 30  $kV_{eff}$  (le même que celui du dispositif de la figure III-4).
- un disjoncteur de 1A qui se déclenche dès que le claquage se produit.
- la cellule d'essai est celle utilisée pour la détermination des tensions d'incubation (figure III-4).
- un chronomètre actionné manuellement indique le temps de rupture.



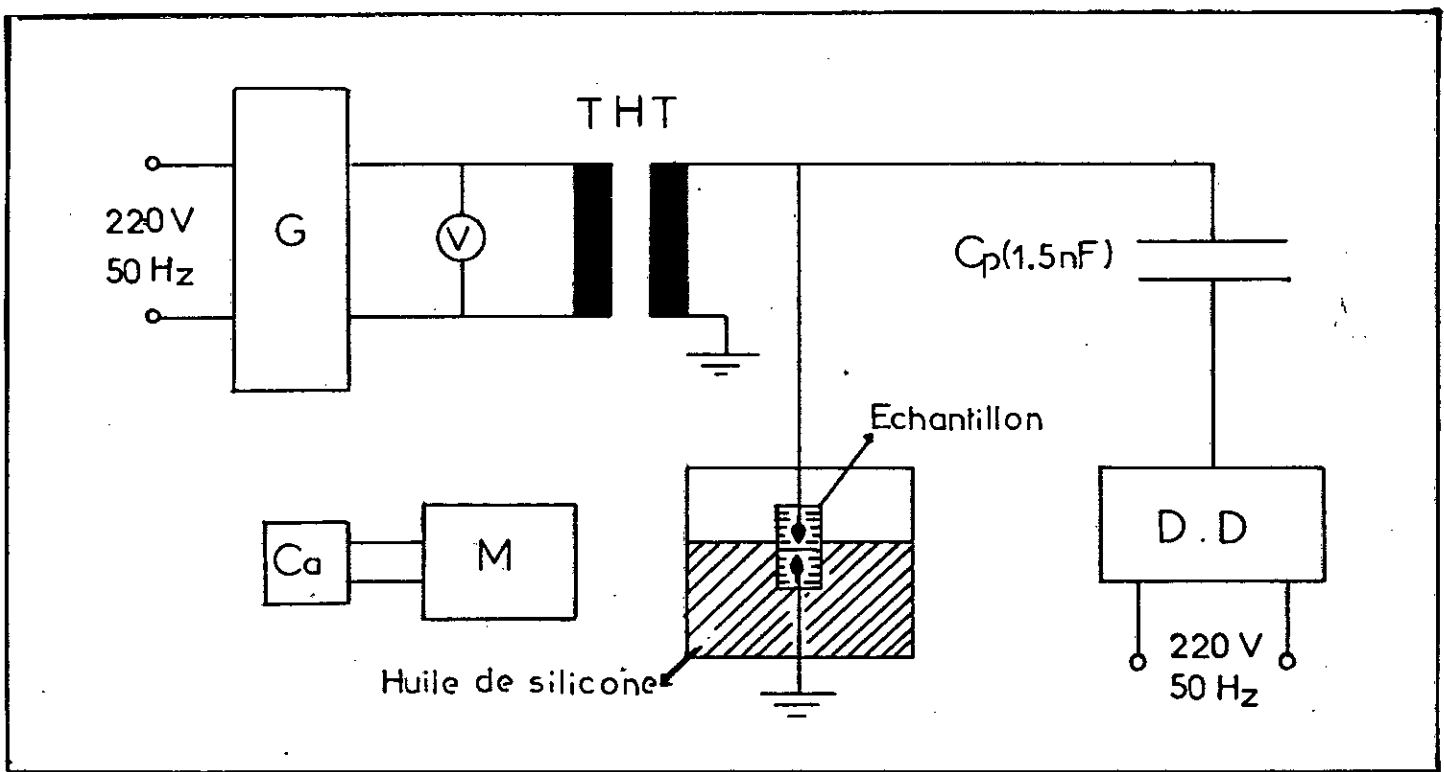


Figure III-4: Dispositif d'essai utilisé pour la détermination des temps d'incubation.

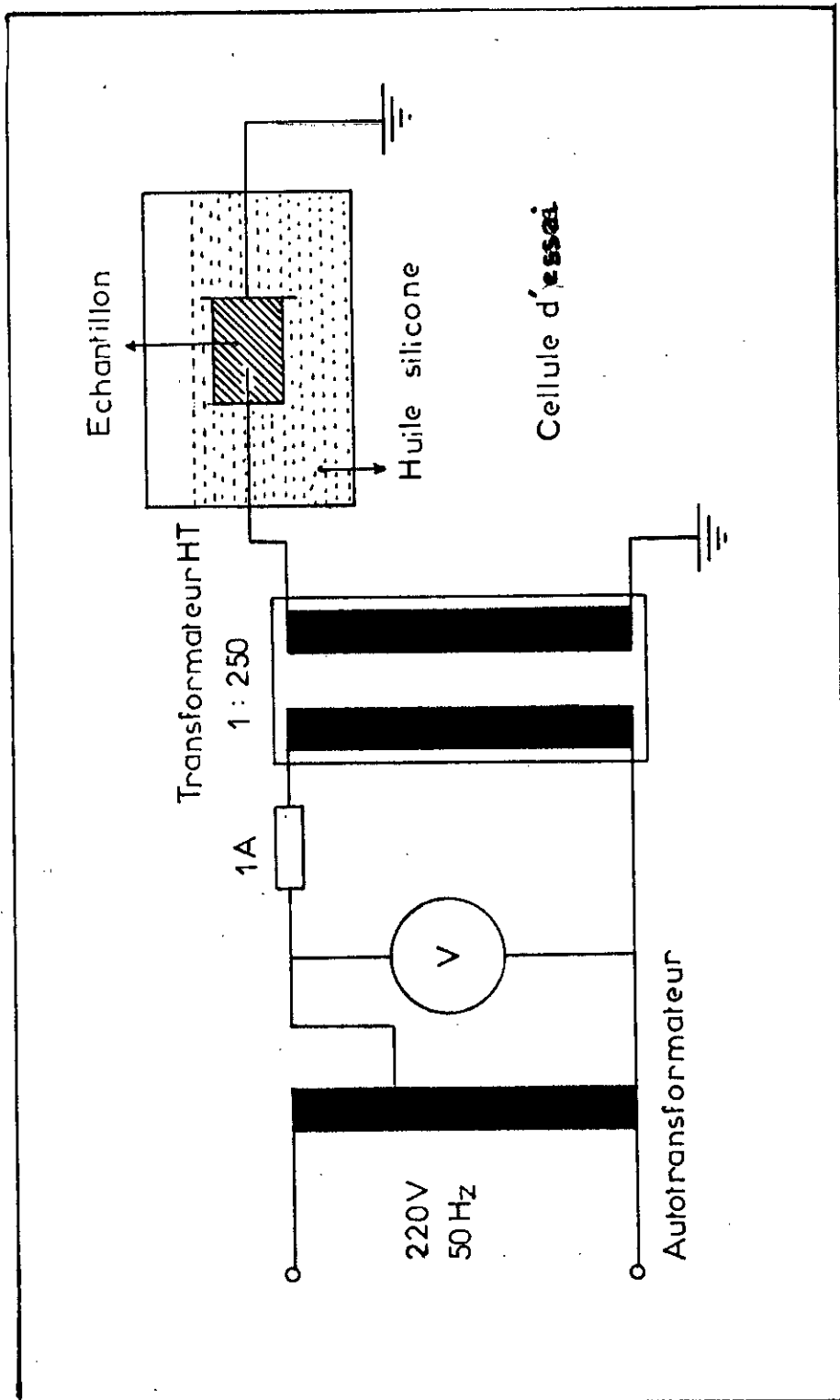


Figure III-5: Dispositif de détermination des tensions et temps de rupture.

### III-2-4-Détermination de la température de transition vitreuse par analyse calorimétrique différentielle:

La calorimétrie différentielle en anglais DSC (Differential Scanning Calorimetry) est une technique calorimétrique dynamique qui connaît actuellement beaucoup de succès dans l'analyse thermique des polymères. Elle consiste à mesurer en fonction de la température et du temps, la différence d'énergie thermique qu'il faut fournir à un échantillon et à une référence pour les maintenir à une température identique. La différence d'énergie thermique est généralement obtenue en faisant varier l'intensité du courant électrique qui traverse des résistances noyées dans des supports échantillon et référence [80÷83].

Cette technique est accessible grâce à des appareils sophistiqués, permettant de mettre en oeuvre des programmes complexes de température (par exemple:  $-150^{\circ}\text{C}$ ,  $+1000^{\circ}\text{C}$ ) et pouvant fonctionner en atmosphère contrôlée et éventuellement sous pression (simulation de mise en oeuvre) [83].

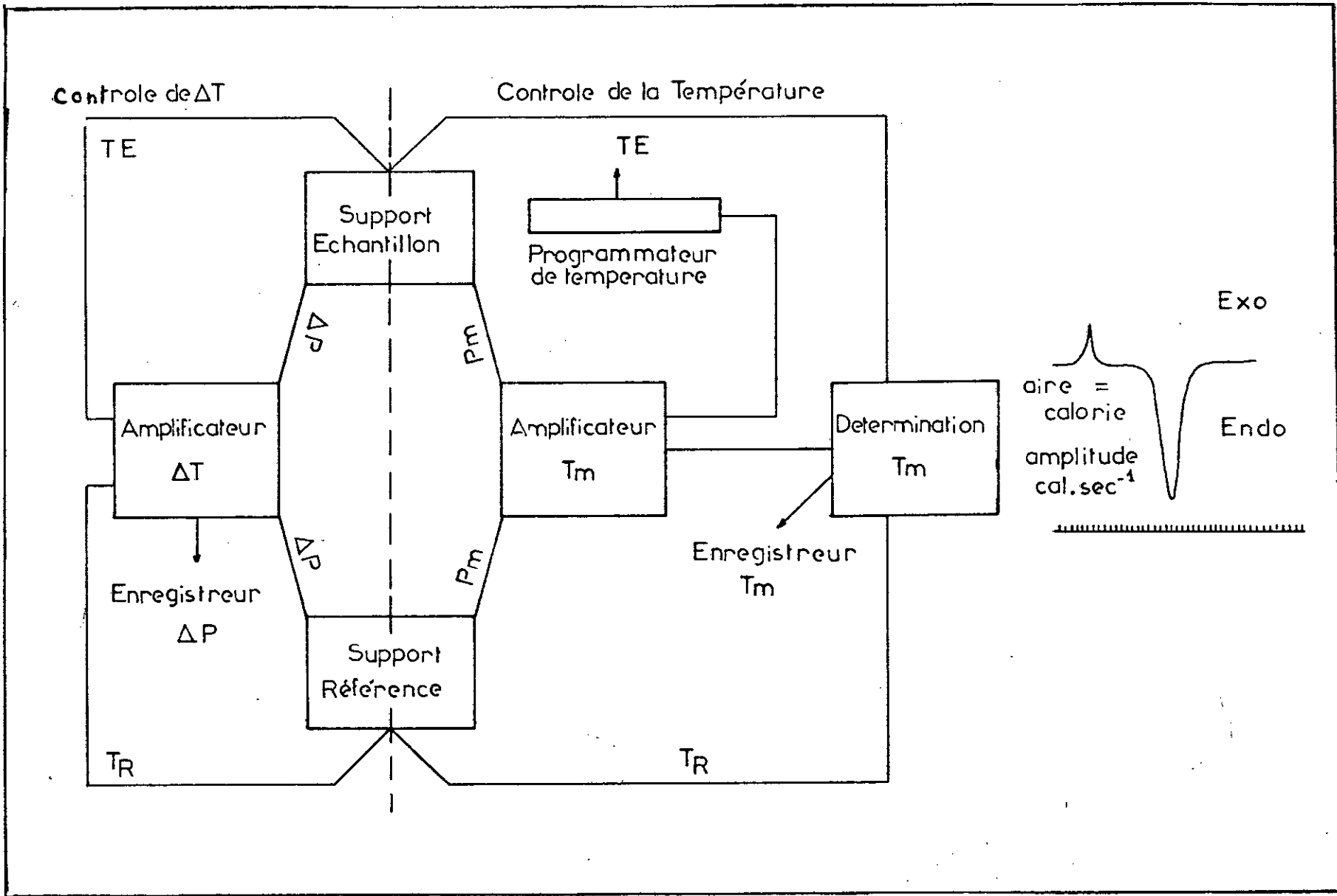
#### III-2-4-1-Appareillage:

Le chauffage de l'échantillon est indépendant de celui de la référence. Il est assuré, la plupart du temps par des résistances noyées dans les éléments qui supportent les capsules métalliques dans lesquelles sont contenus l'échantillon et la référence. La mesure des températures est assurée par des thermocouples ou des thermomètres à résistances. La mesure de la différence d'énergie nécessite l'utilisation de chaînes électroniques qui diffèrent d'un appareil à un autre mais qui, en général, comportent deux parties (figure III-6).

-une partie assurant le contrôle de la température et délivrant une même puissance moyenne à chacun des supports en fonction du programme de température choisi. Un signal proportionnel à la température est émis.

-une partie assurant le contrôle de la différence de température entre l'échantillon et la référence. Un incrément de puissance est envoyé sur le support de l'échantillon si le phénomène est endothermique, ou de la référence s'il est exothermique afin de réaliser l'équilibre. Un signal proportionnel à cet incrément est envoyé à l'enregistreur [80,81,82,83].

Figure III-6: Schéma d'un appareil de calorimétrie différentielle et aspect d'un thermogramme [81].



### III-2-4-2-Facteurs expérimentaux affectant la précision des résultats:

Le bilan des échanges thermiques au niveau de la tête de mesure peut s'écrire pour l'échantillon:

$$m_1 \left( c_1 \frac{dT}{dt} + \frac{dH}{dt} \right) + \dot{P}_1 - P_1 \quad (\text{III-4})$$

Pour la référence:

$$m_2 c_2 \frac{dT}{dt} + \dot{P}_2 - P_2 \quad (\text{III-5})$$

où:  $m$  est la masse de l'échantillon ou de la référence.  
 $H$  est la chaleur mise en jeu au cours de la transformation.  
 $c$  est la capacité calorifique.  
 $T$  est la température  
 $P$  est la puissance fournie.  
 $P'$  représente les pertes thermiques si les conditions de travail sont adiabatiques.

Par différence des deux relations précédentes, il vient:

$$m_1 \frac{dH}{dt} + (m_1 c_1 - m_2 c_2) \frac{dT}{dt} + \dot{P}_1 - \dot{P}_2 - P_1 - P_2$$

soit:

$$m_1 \frac{dH}{dt} + K(T) \frac{dT}{dt} + h - \Delta P \quad (\text{III-6})$$

Le terme  $K(T).dT/dt$ , explique la dérive de la ligne de base qui peut signifier une dissymétrie du système (porte échantillon non situé dans l'axe du four par exemple) ou une variation de la masse ou de la capacité thermique des échantillons [83]. Cette dérive peut être annulée soit électriquement soit en utilisant une référence de même capacité calorifique que l'échantillon. Nous pouvons la négliger et écrire:

$$m_1 \frac{dH}{dt} + h - \Delta P \quad (\text{III-7})$$

Au cours d'une transition, l'aire du pic  $P=f(t)$  est donc directement proportionnelle à l'énergie mise en jeu et n'est pas affectée par la vitesse de montée en température, par la capacité calorifique, la conductivité thermique et la forme de l'échantillon et de la référence.

Par contre la détermination de la température présente certaines difficultés car les mêmes facteurs influent sur l'allure du thermogramme [80,81,83].

### III-2-4-3-Mesure des températures de transition:

#### a-Détermination d'une température de transition:

En raison de l'existence d'une certaine résistance thermique entre l'échantillon et la source thermique, une différence entre la température de transition indiquée par l'instrument et la température de transition réelle se manifeste.

Pour une mesure précise, il est possible d'évaluer expérimentalement ce décalage en étudiant, par exemple, la fusion de 2 à 5 mg d'un matériau très pur tel que l'Indium, conditionné de la même manière que l'échantillon en utilisant les mêmes conditions d'enregistrement et de vitesse de montée en température.

Une autre cause d'erreur est la variation non linéaire de la force électromotrice fournie par le thermocouple en fonction de la température.

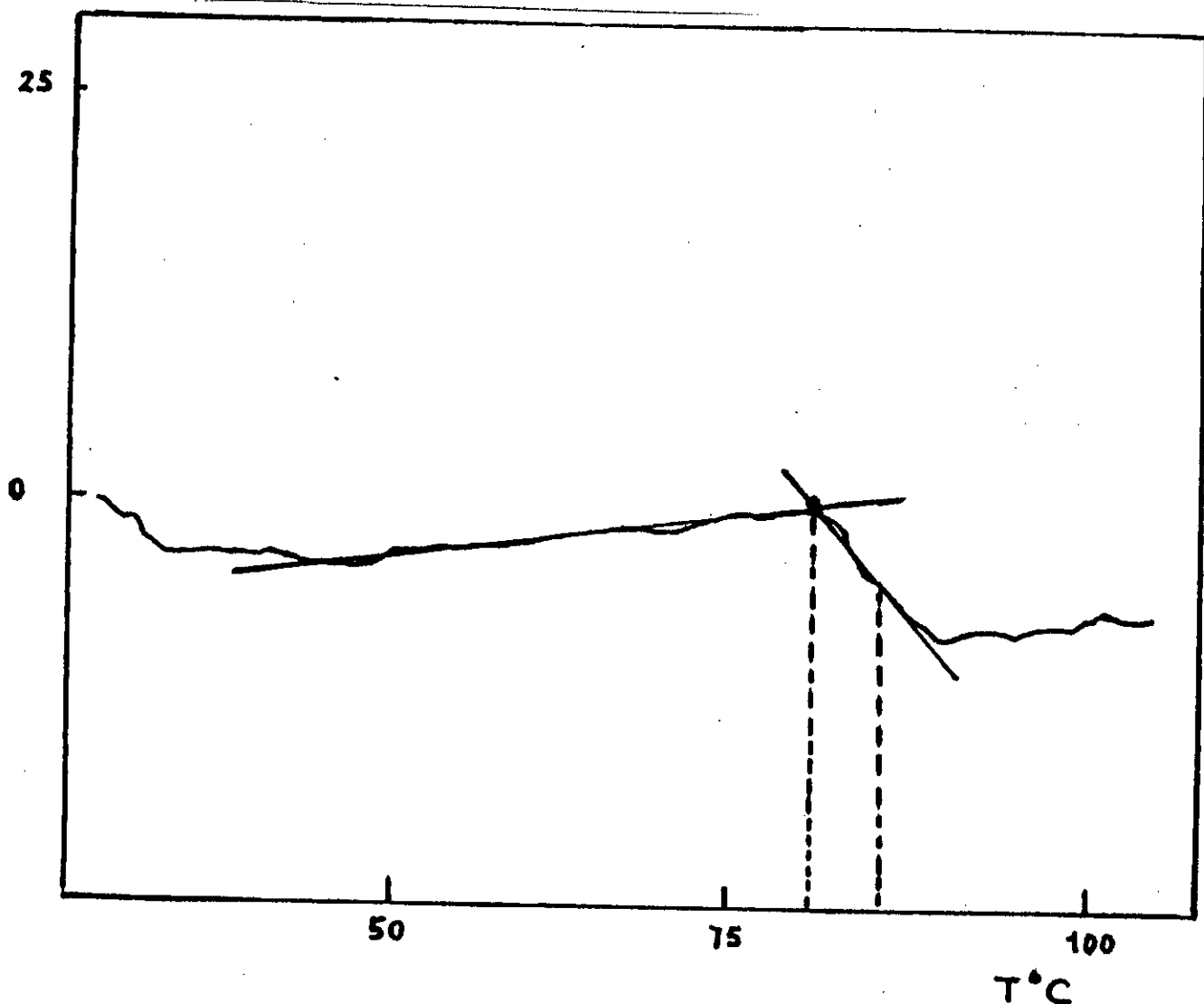
Pour toutes ces raisons, il est bon d'étalonner l'appareil avec des matériaux purs, au point de fusion bien défini.

La source d'erreur la plus importante lors des mesures de températures est la variation de la résistance de contact entre l'échantillon et la source thermique provoquée par un mauvais conditionnement ou par une cellule polluée [80,81].

#### b-Température de transition du deuxième ordre dans les polymères:

On appelle ainsi la température de transition vitreuse car elle a lieu sans échange de chaleur. Bien que sa signification physique soit encore très controversée, il faut indiquer qu'elle constitue une des propriétés caractéristiques d'une phase amorphe, puisqu'elle correspond au passage de l'état vitreux à l'état viscoélastique. A cette température, de nombreuses caractéristiques du matériau varient de façon discontinue et en particulier sa chaleur spécifique [80+82].

La température de transition vitreuse notée  $T_g$  se manifeste sur un diagramme d'analyse thermique différentielle par un changement subit de la ligne de base (figure III-7).



**Figure III-7:** Analyse thermique différentielle appliquée à la détermination de la température de transition vitreuse du Polychlorure de Vinyle [81].

Indépendamment de la méthode de mesure, la valeur de la température de transition vitreuse dépend de la vitesse de refroidissement du matériau. En effet, à l'état vitreux, les interactions moléculaires sont suffisamment importantes pour bloquer tout mouvement des chaînes susceptible de se produire sous l'effet de l'agitation thermique et capables de conduire à une configuration plus stable. Aussi plus la température de refroidissement varie lentement, plus la chaîne peut prendre une configuration la plus probable et plus le point de transition vitreuse apparait à une température plus basse. Il est donc nécessaire de mesurer une température de transition vitreuse en élevant la température. La précision de la mesure dépend de toutes les variables que nous avons

énumérées à propos de la détermination des températures de transition. Sur un thermogramme deux températures peuvent être choisies comme valeur de la température de transition vitreuse (figure III-7).

-celle qui correspond au point d'inflexion de la courbe,

-celle qui correspond à l'intersection de la ligne de base du côté des basses températures avec la tangente au point d'inflexion de la courbe.

Cette seconde valeur est la plus reproductible, c'est elle qui est habituellement choisie [81].

### III-2-5-La spectroscopie d'absorption infra-rouge:

#### III-2-5-1-Généralités:

La spectroscopie ou spectrophotométrie infra-rouge est basée sur l'étude des interactions entre la matière et un rayonnement électromagnétique.

Une molécule possède un certain nombre de fréquences de vibrations fondamentales et à chacune d'elles peut correspondre l'absorption d'un rayonnement de même fréquence. Ces fréquences varient de 100 à 4000  $\text{cm}^{-1}$  et les bandes d'absorption se situent dans l'infra-rouge. Le spectre infra-rouge d'une molécule complexe peut présenter un grand nombre de bandes d'absorption d'intensités variables, situées à des fréquences quelconques. Le spectre, dans sa totalité, est caractéristique d'une molécule. Deux molécules différentes n'ont pas le même spectre, ce qui fait qu'un spectre infra-rouge peut-être utilisé comme un moyen d'identification.

A une longueur d'onde donnée, l'absorption d'un composé est définie par le rapport entre l'intensité  $I$  du rayonnement transmis par l'échantillon et l'intensité  $I_0$  de la source. Ce rapport est appelé transmission.

$$T = \frac{I}{I_0} \quad (\text{III-8})$$

$T$  est fréquemment exprimé en pour-cent. Dans certains appareils, l'absorption est donnée en densité optique  $D$ :

$$D = \log\left(\frac{1}{T}\right) = \log\left(\frac{I_0}{I}\right) \quad (\text{III-9})$$

D'après la loi de Beert Lambert, la densité optique d'une bande d'absorption est proportionnelle à la concentration. L'application de cette loi permet donc de déterminer la concentration d'un corps en solution dans un solvant non absorbant.



Les spectres infra-rouge ne permettent pas toujours de déceler avec certitude la présence ou l'absence de certains groupements, mais les indications qu'ils donnent peuvent accélérer considérablement les déterminations structurales réalisées avec d'autres méthodes (diffusion Raman par exemple) [83 ÷ 88].

### III-2-5-2-Appareillage:

Comme le montre la figure III-8 un spectrophotomètre se compose de quatre parties principales: la source de rayonnement, le compartiment à échantillon, le système optique et le système de mesure et d'enregistrement.

Les appareils actuels sont à double faisceau, c'est-à-dire que le rayonnement émis par la source est fractionné en deux faisceaux, l'un traversant l'échantillon, l'autre constituant la référence. Le détecteur compare en permanence leurs intensités lumineuses [84,85,87].

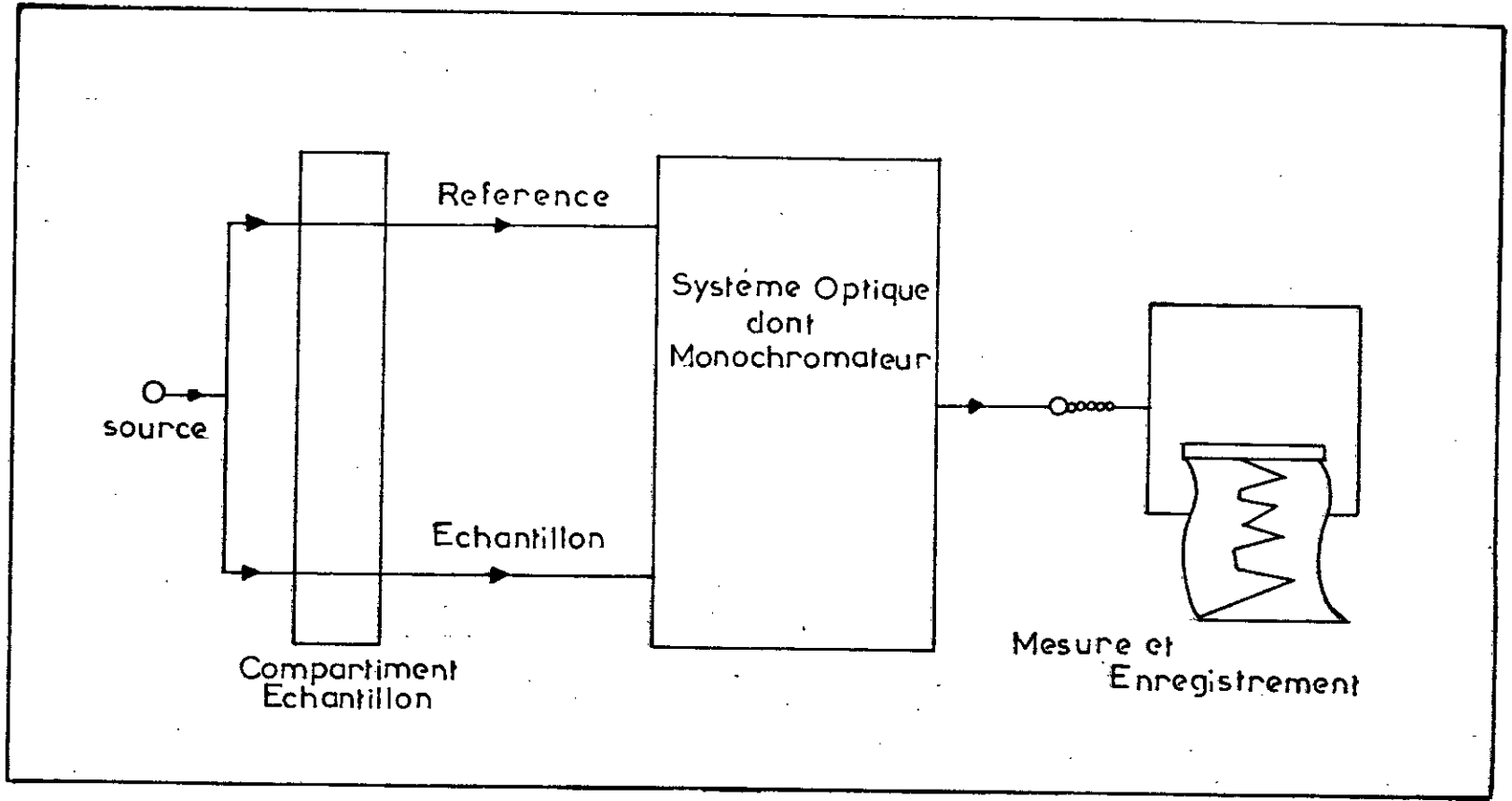
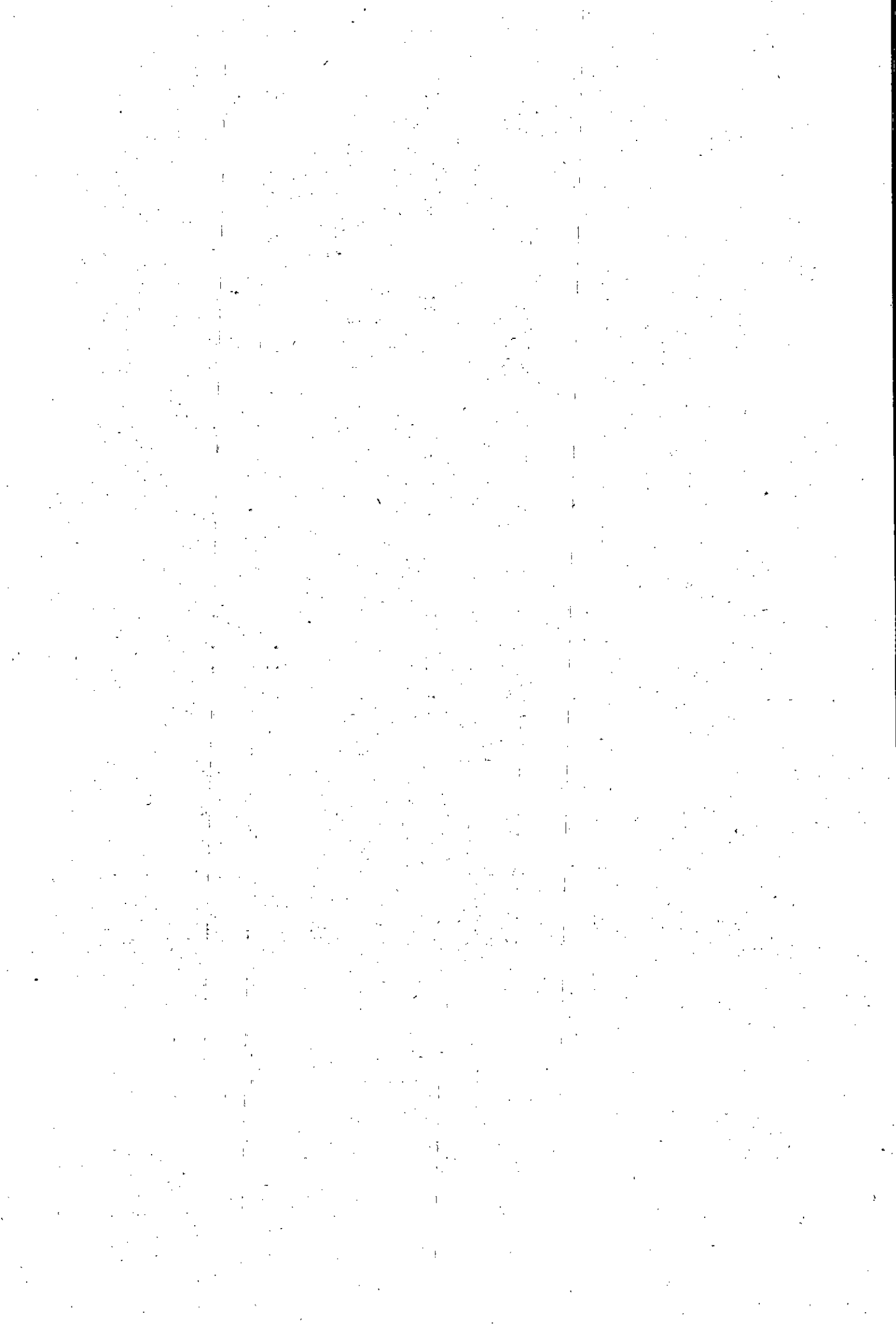


Figure III-9: Schéma de principe d'un spectrophotomètre infra-rouge à double faisceau [84].

**CHAPITRE IV**  
**"INCUBATION DES ARBORESCENCES**  
**ELECTRIQUES**  
**DANS LE POLYETHYLENE"**



Bien que tous les systèmes d'isolation électrique soient concernés par le processus de dégradation qu'est l'arborescence, une attention toute particulière est cependant apportée aux isolations de câbles de transport d'énergie, c'est la raison pour laquelle nous avons utilisé pour nos essais préliminaires le Polyéthylène Basse Densité (PEBD).

#### IV-1-Le polymère étudié:

Malgré ses excellentes propriétés diélectriques, le polyéthylène soumis à l'action d'un champ électrique peut être le siège de phénomène de dégradation pouvant provoquer à plus ou moins long terme la destruction de l'isolation par rupture.

La formule théorique du polyéthylène est:



La valeur de la densité d'un polyéthylène est principalement déterminée par son mode de polymérisation. Un polyéthylène basse densité (de  $\approx 0.92$ ), comportant donc de nombreuses ramifications latérales, sera obtenu par un procédé de polymérisation haute pression (1000 à 3000 bars) : le catalyseur de réaction est l'oxygène. On dit aussi polyéthylène radicalaire.

De part sa transparence, le polyéthylène nous permet de visualiser la phase d'initiation de l'arborescence électrique.

Une analyse en spectroscopie infra-rouge de différents films de polyéthylène de 100  $\mu\text{m}$  d'épaisseur (SP2) prélevés sur une plaque à divers endroits, sur le nombre d'onde 1800 à 1700  $\text{cm}^{-1}$  (figure VI-1) révèle que notre polyéthylène n'a été que très sensiblement oxydé (pas de présence d'oxygène ou de groupes qui le composent) comparé à un spectre de polyéthylène (SPT) sur lequel nous relevons plusieurs pics sur la même bande.

#### IV-2-Mesures sur la phase d'incubation:

Les phases d'incubation et de propagation des arborescences électriques se distinguent par l'existence de décharges partielles. Plusieurs mesures permettent en théorie de discriminer une phase de l'autre.

-La visualisation directe de l'extrémité de la pointe par observation en microscopie optique: c'est une technique que nous avons utilisé dans le cas du Polyéthylène. Une cellule permettant l'observation de l'échantillon sous tension est alors nécessaire.

-La détection des impulsions de courant liées aux décharges dans l'arborescence naissante: cette technique nécessite un mesureur de décharges. Ces mesures doivent être faites dans une cage de Faraday afin de s'affranchir des perturbations électriques d'origines diverses.

-La détection des impulsions acoustiques liées aux décharges: cette technique, qui n'est cependant pas très sensible ne nous a pas été accessible.

-La détection des émissions lumineuses accompagnant le courant de décharge: cette méthode met en oeuvre un photomultiplicateur qui permet une détection très sensible et présente l'avantage d'être découplé du réseau électrique. Il n'y a donc pas de problèmes de parasites.

Nous avons opté pour la visualisation directe de l'extrémité de la pointe par observation en microscopie optique afin de relever les niveaux de tension correspondant à l'initiation de l'arborescence dans le polyéthylène.

Des essais de mesure de temps d'incubation ont été réalisés sous rampe de tension de vitesse de montée  $1,5 \text{ kV}_{\text{eff}}/\text{min}$ .

Le principe de mesure est le suivant: nous appliquons la rampe de tension à chaque éprouvette de polyéthylène jusqu'à apparition de l'arborescence. A partir de cet instant qui est préalablement enregistré ainsi que le niveau de tension lui correspondant, nous maintenons le niveau de tension constant jusqu'au claquage. Le tableau IV-1 récapitule les différentes mesures effectuées.

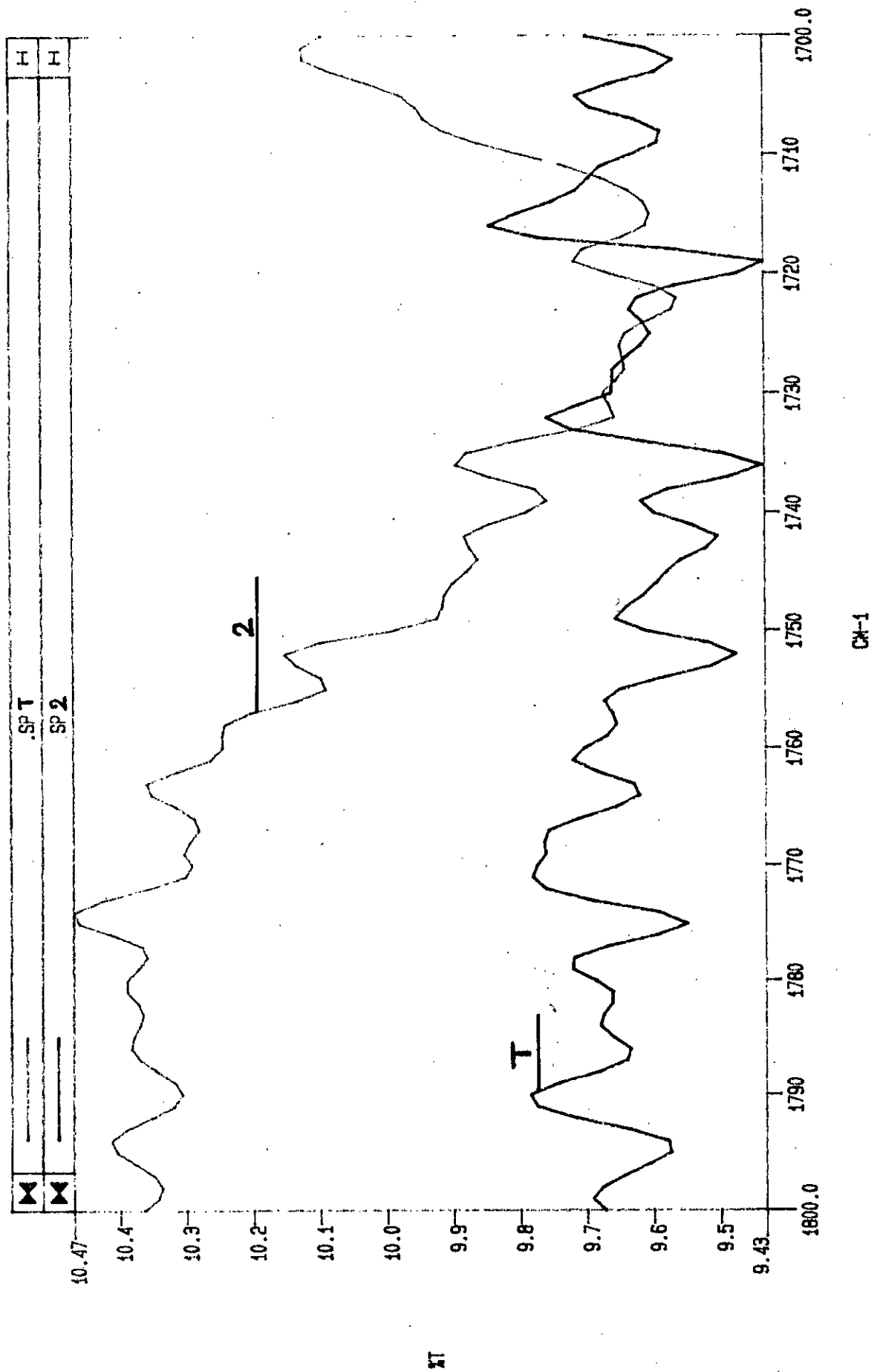


Figure IV-1: Spectre infra rouge du PEBD.

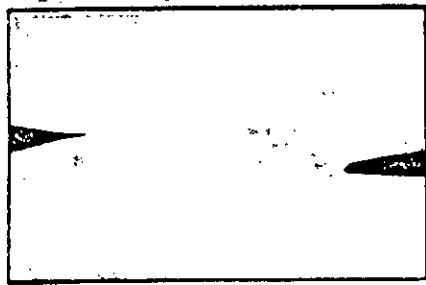
KT

Distance interélectrode (mm)	Tension V d'initiation (kV)	E(MV/cm)	E <sub>c</sub> (MV/cm)	Temps d'initiation
2.46	8.47	4.08	0.43	4mn
2.10	11.6 (claquage)	5.76	0.43	5mn
2.06	8.73	4.35	0.43	4mn
2.00	14.46	10.27	0.43	9mn38s
2.00	7.60	3.81	0.43	4mn
2.00	9.44	6.70	0.43	6mn17s
1.95	14.87	10.61	0.36	9mn54s
1.95	11.19	7.98	0.43	7mn27s
1.95	9.89	7.02	1.71	4mn
1.86	8.30	8.45	0.50	5mn
1.86	10.69	10.89	0.54	5mn
1.86	8.60	8.75	0.43	5mn
1.86	8.03	4.08	/	4mn
1.45	9.33	5.00	/	4mn
1.23	12.63	14.00	0.59	6mn
0.50	6.39	4.35	0.43	2mn
0.35	5.18	3.85	0.50	2mn

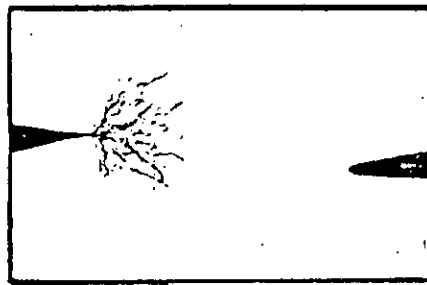
**Tableau IV-1:** Résultats de mesure des tensions d'incubation de l'arborescence électrique dans le PEBD (le rayon de courbure est de 3  $\mu$ m).

Les différentes phases de la propagation d'une arborescence électrique sont décrites aux figures IV-2 et IV-3.





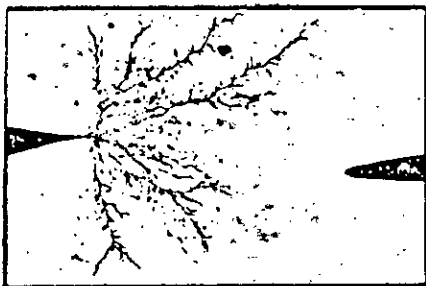
$t_0$



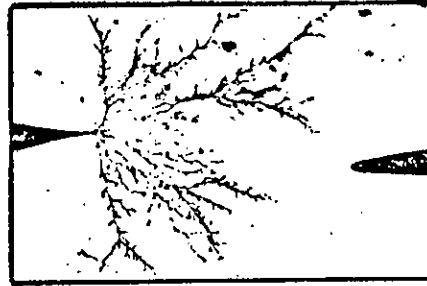
$t_1$



$t_2$



$t_3$

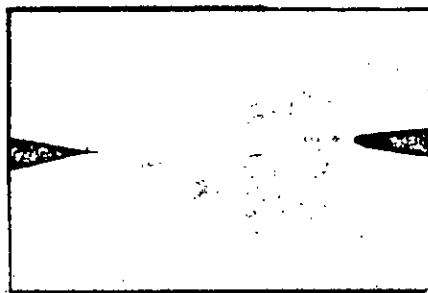


$t_4$

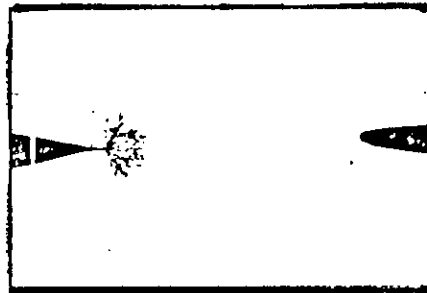


$t_5$

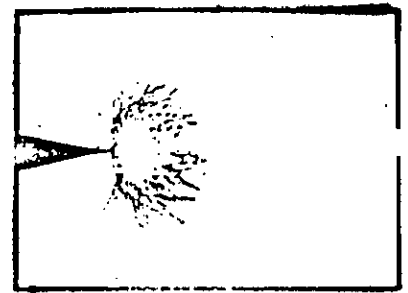
$V = 13,25 \text{ kV-50Hz}$



$t'_0$



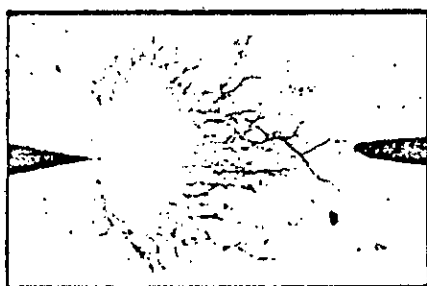
$t'_1$



$t'_2$



$t'_3$



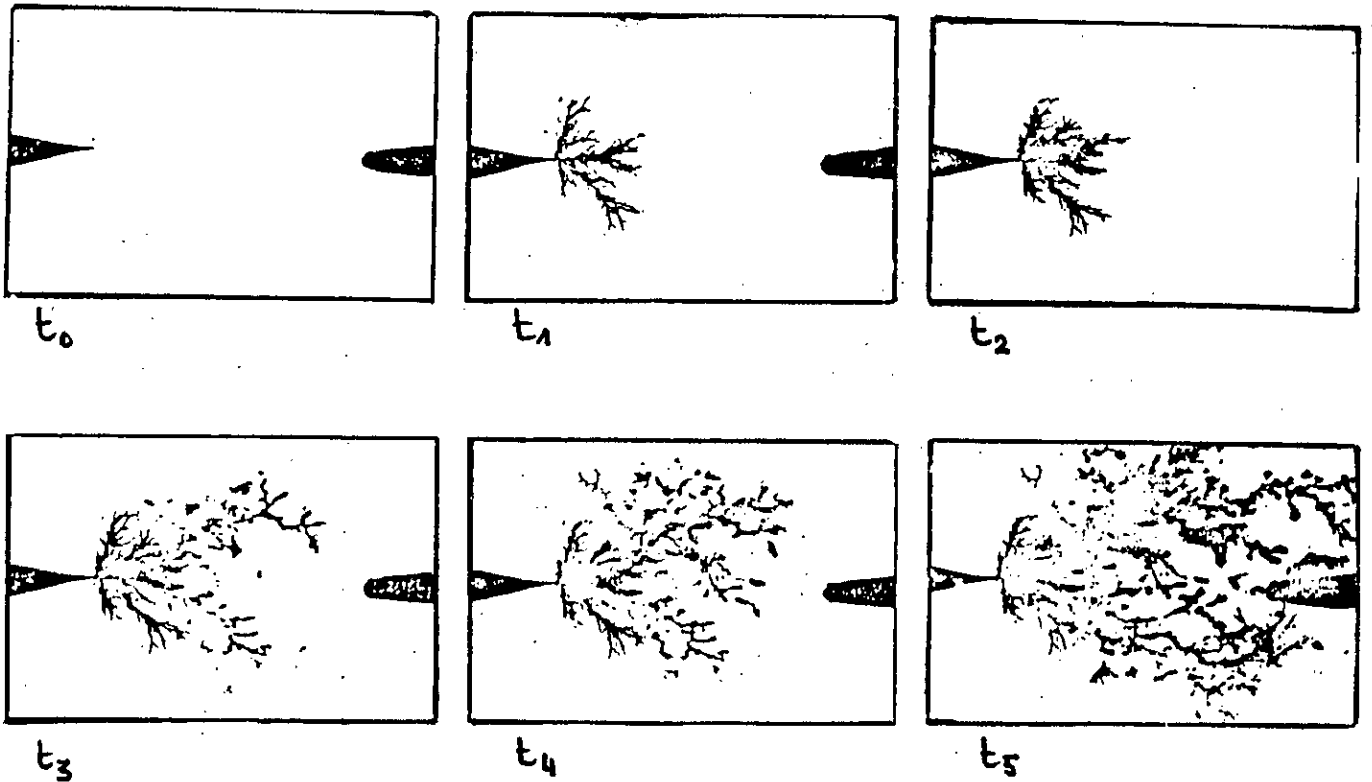
$t'_4$



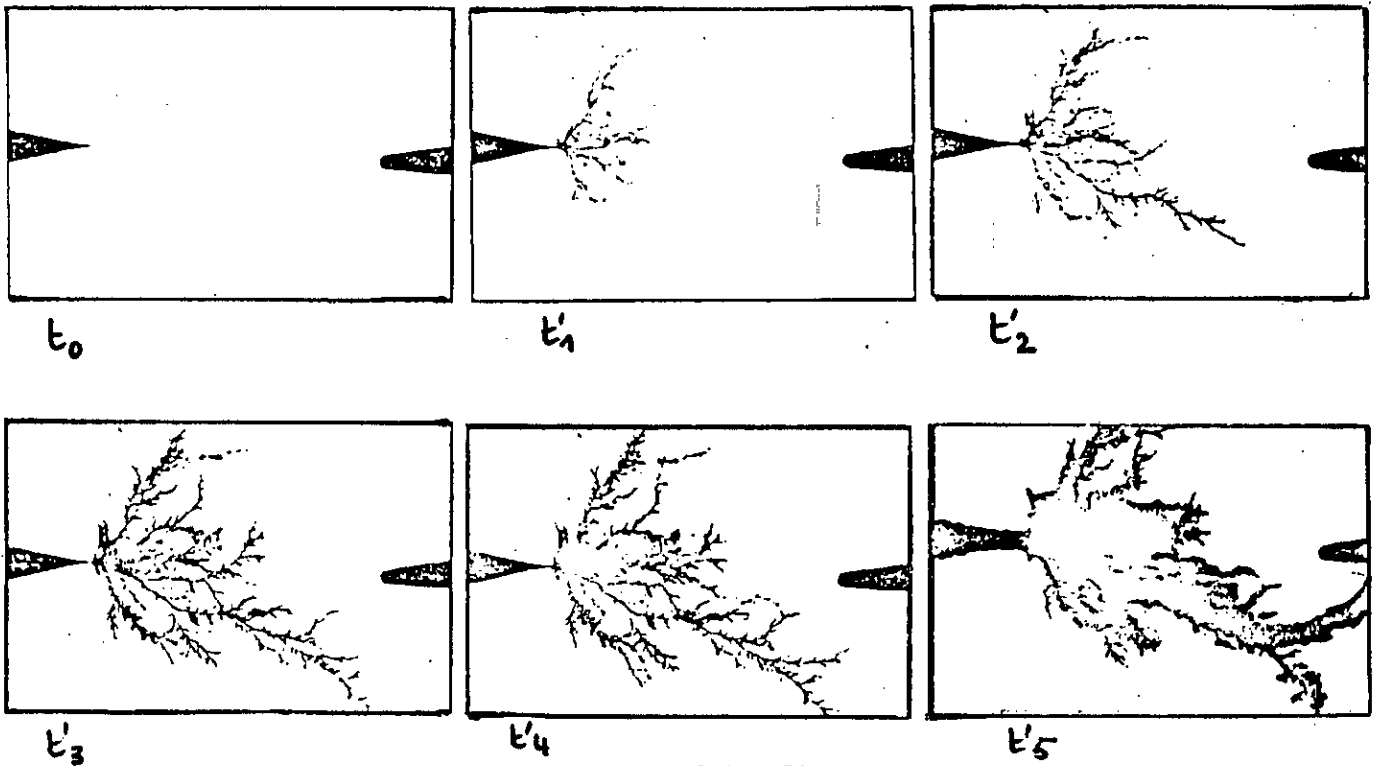
$t'_5$

$V = 14,46 \text{ kV-50Hz}$

Figure IV-2: Evolution de la forme des arborescences pour  $V = 13,25 \text{ kV}$  et  $V = 14,46 \text{ kV}$



$V = 10,69 \text{ kV-}50 \text{ Hz}$



$V = 11,8 \text{ kV-}50 \text{ Hz}$

**Figure IV-3:** Evolution de la forme de l'arborescence pour  $V = 10,69 \text{ kV}$  et  $V = 11,8 \text{ kV}$

#### IV-3-Traitement statistique de la phase d'incubation dans le polyéthylène:

Pour analyser nos résultats nous avons eu recours à la statistique de Weibull. Bien que tous les aspects de cette statistique aient été déjà discutés au chapitre II, nous tenons cependant à décrire le mode d'exploitation de cette statistique.

Les essais effectués sont du type dynamique, sous rampe de tension de 1,5 kV<sub>eff</sub>/min.

Nous considérons seulement les tensions d'incubation obtenues pour des éprouvettes de distance interélectrode de  $2 \pm 0,15$ mm dans des conditions expérimentales identiques.

La première étape consiste à classer les niveaux de tensions d'incubation par ordre croissant, et à attribuer à chaque niveau  $G_i$  ( $i=1, \dots, n$  ( $n$  étant le nombre total d'éprouvettes)) la probabilité  $P_i$  donnée par la relation A-3.

$$P_i = 100 \times \frac{i}{n-1} \quad \text{en \%} \quad (\text{A-3})$$

La seconde étape consiste à porter les points expérimentaux ( $G_i$ ,  $\ln(1/1-P_i)$ ) sur une échelle logarithmique, figure IV-4.

En conclusion, la courbe obtenue (figure IV-4) laisse supposer qu'un modèle de Weibull à trois paramètres, qui intègre donc la variable ( $E-E_g$ ), serait plus approprié à la description des résultats. Le calcul du seuil n'a pas été effectué compte tenu du petit nombre de points expérimentaux collectés. Cependant, cette courbe traduit une faible dispersion statistique des résultats et permet de confirmer le bien fondé de la procédure expérimentale choisie pour déterminer les tensions d'incubation des arborescences électriques [71].

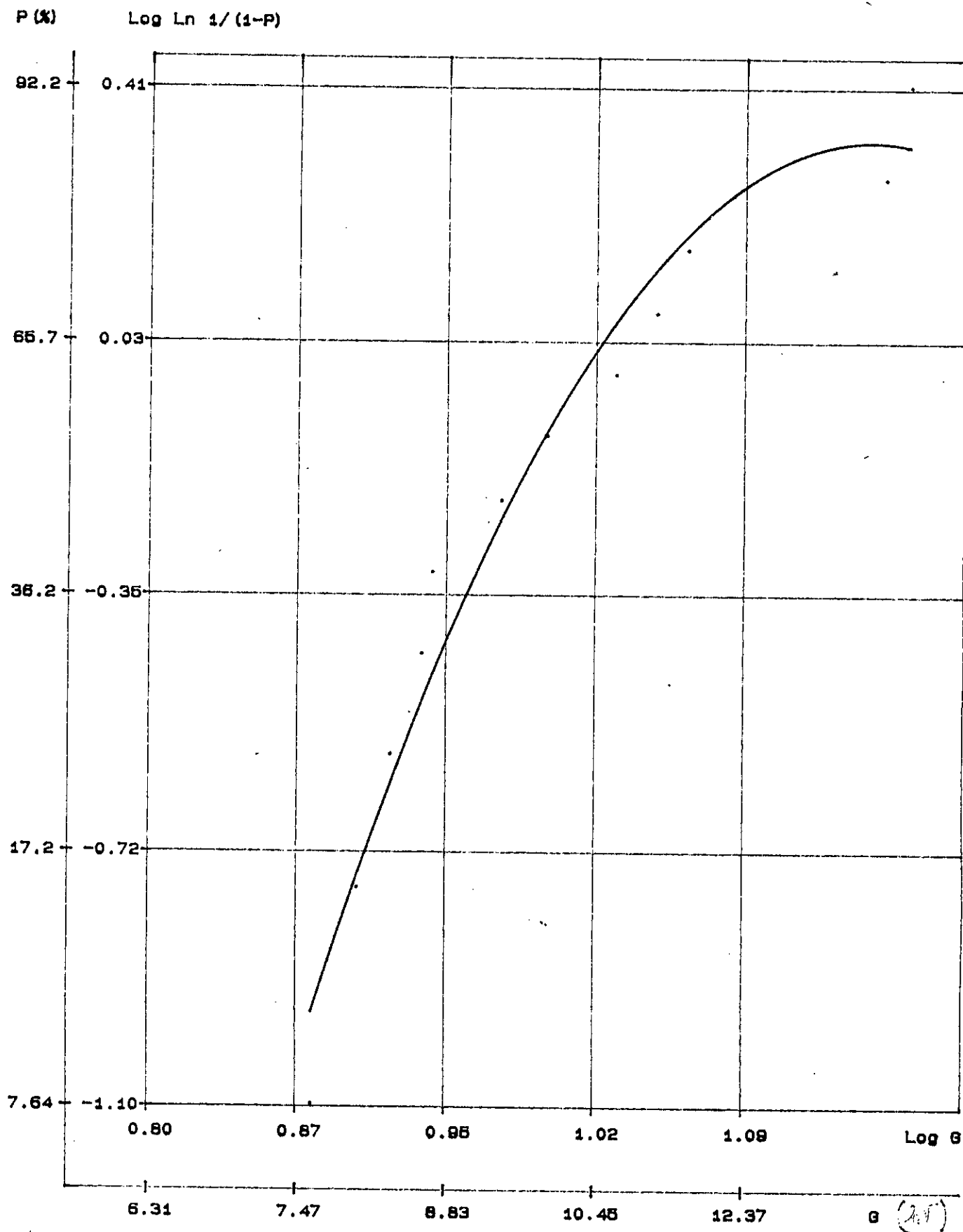


Figure IV-4: Analyse de Weibull des tensions d'incubation obtenues sur des éprouvettes de deux millimètres de distance interélectrode.

#### IV-4-Discussion-Essais d'interprétation:

Cette partie sera consacrée à l'analyse de nos résultats de la phase d'incubation de l'arborescence électrique dans le Polyéthylène.

##### IV-4-1-Détermination du champ électrique dans le polyéthylène:

Le champ électrostatique en pointe d'électrode, qui est aussi le champ maximum dans la configuration choisie (pointe-pointe), a été calculé à partir de la tension d'apparition de l'arborescence selon la formule calculée par Mason pour l'étude présentée par Griac et al [89]:

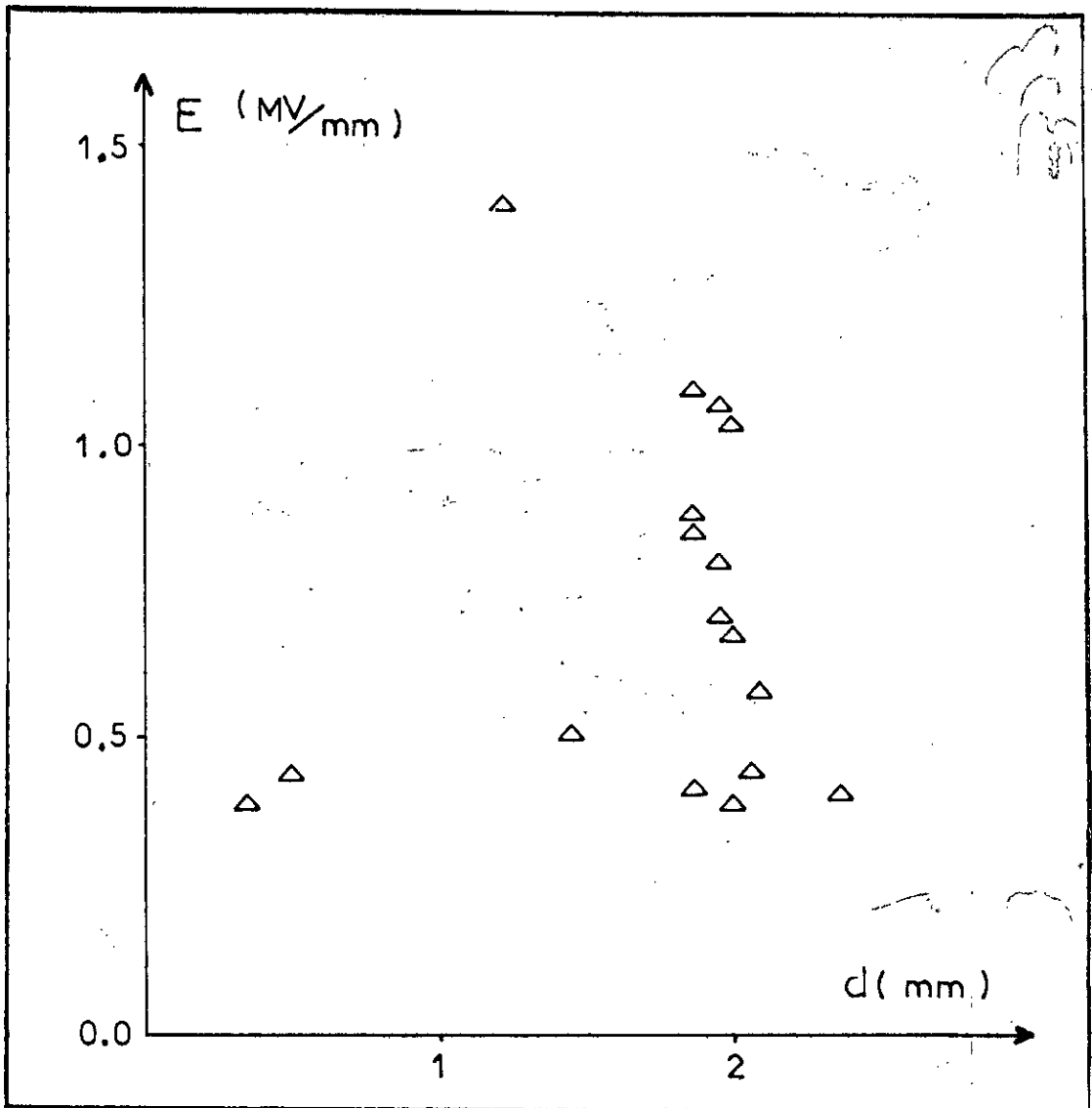
$$E_{\max} = \frac{2 V}{r \ln \left[ \frac{2d \left( 1 + \frac{2d}{R} \right)}{r} \right]} \quad (\text{IV-1})$$

Les diverses mesures réalisées sur des échantillons présentant différentes distances interélectrodes sont portées à la figure IV-5.

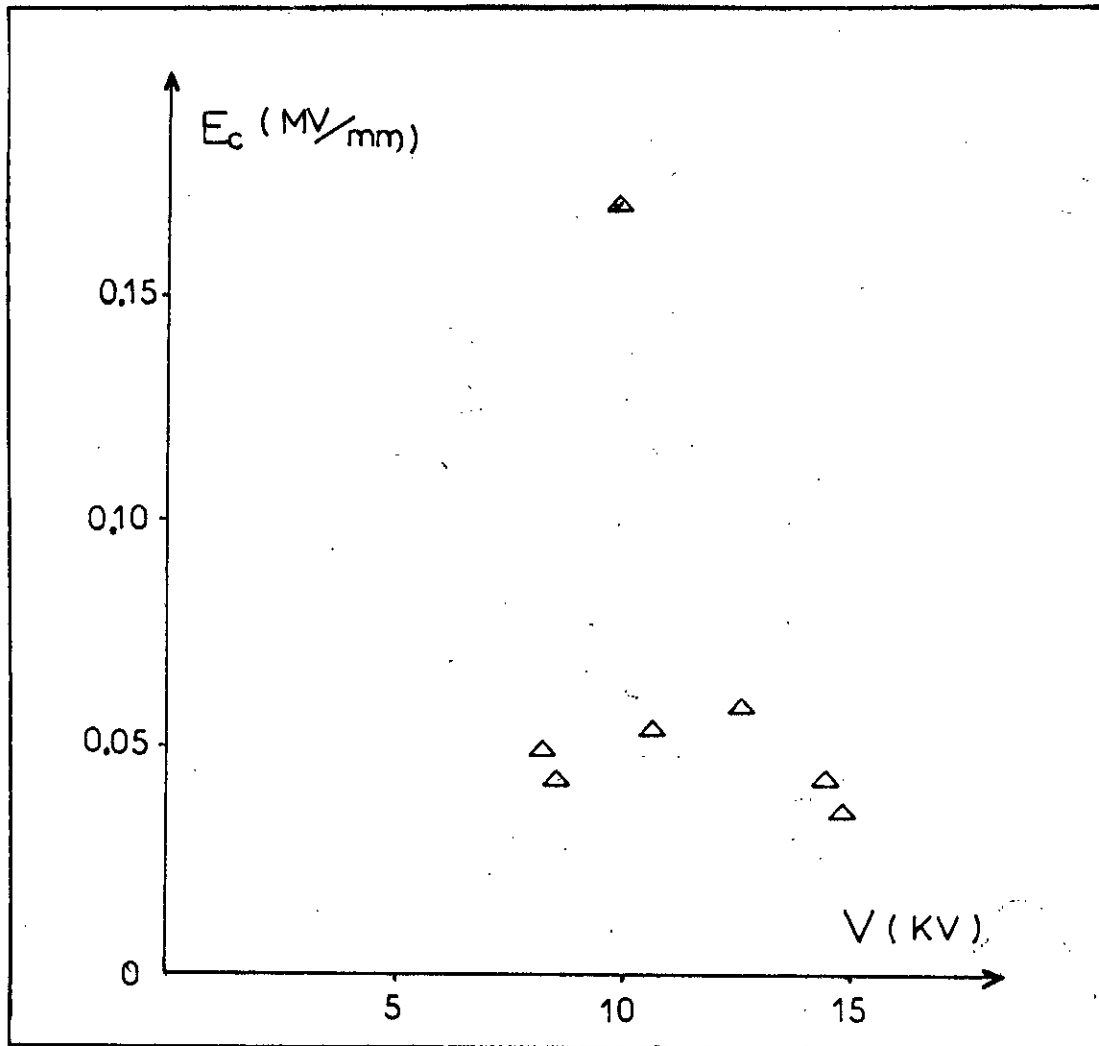
Les valeurs du champ électrostatique d'apparition de l'arborescence électrique sont distribuées de 4 MV/cm à 14 MV/cm. Elles ne prennent pas en compte l'effet de la charge d'espace qui est un facteur déterminant du vieillissement électrique. De plus, et dans la mesure où ces valeurs ont été obtenues sous rampe de tension, elles intègrent l'effet de deux variables champ et temps. Nous avons cependant montré que les mesures de tensions d'incubation pouvaient être réalisées selon la technique mise en oeuvre [71].

##### IV-4-2-Détermination des tensions critiques:

Nous avons constaté une grande variabilité des tensions critiques mesurées sur échantillon. Un certain nombre d'entre eux ne présentent pas de seuil. La figure IV-6, donne la représentation tension d'incubation-champ critique dans le cas des échantillons de deux millimètres de distance interélectrode. Les champs critiques sont distribués autour de 1 MV/cm ce qui est un bon ordre de grandeur. Aucune corrélation cependant ne peut être établie entre les tensions d'incubation et les tensions critiques.



**Figure IV-5:** Champ électrostatique d'apparition des arborescences en fonction de la distance interélectrode.



**Figure IV-6:** Tension d'incubation et champ critique d'injection des porteurs.

En conclusion, ces premiers essais effectués sur le polyéthylène nous ont permis de nous initier au phénomène d'arborescence électrique.

Lors de notre étude sur l'initiation de l'arborescence électrique dans le polyéthylène, nous nous sommes fixés deux objectifs:

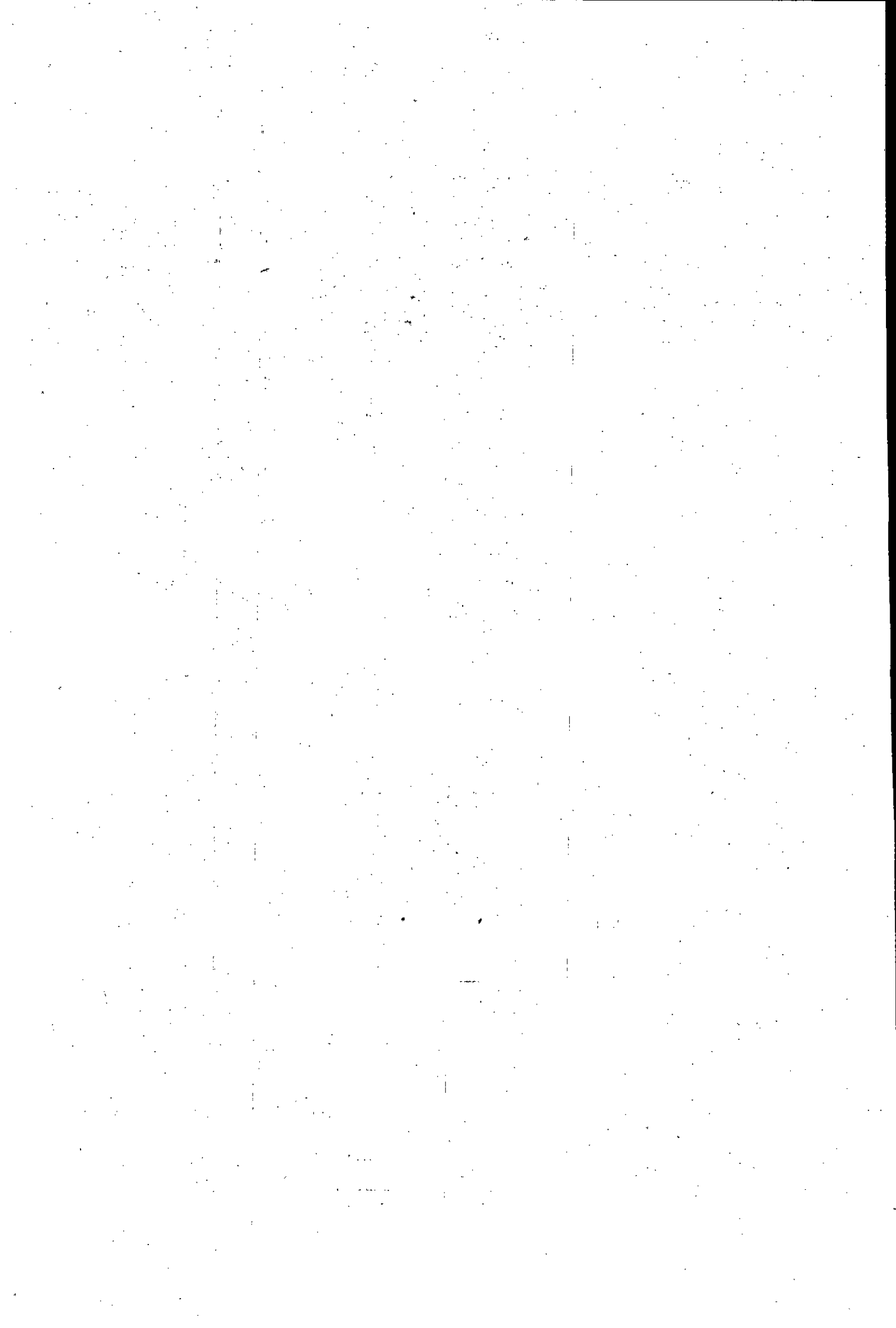
Le premier est de mettre au point une méthodologie pour la détermination des temps (ou tensions) d'incubation, objectif réalisé avec succès.

Le second est d'envisager les corrélations éventuelles entre tension d'apparition de l'arborescence électrique et tension seuil d'injection de charges. Aucune corrélation n'est obtenue au cours de ces essais préliminaires.

Nous pouvons conclure que le paramètre à corrélérer à la tension critique d'injection est le temps d'incubation sous contrainte constante, et non la tension d'incubation mesurée comme nous l'avons fait sous rampe de tension. Cette étude est actuellement en cours au LGE.



**CHAPITRE V**  
**"INFLUENCE DU VIEILLISSEMENT**  
**THERMIQUE SUR LA**  
**RUPTURE PAR ARBORESCENCE**  
**ELECTRIQUE DANS LE PVC"**



La dégradation d'un polymère est principalement provoquée par l'action combinée de l'oxygène, de la chaleur et de la lumière. Ce processus se trouve accéléré quand un vieillissement électrique lui est combiné [1,2]. Dans le cadre d'un projet de recherche entre l'ENICAB et le Laboratoire de haute tension de l'ENP, nous nous sommes intéressés lors de notre étude sur la rupture par arborescence électrique après un vieillissement thermique préalable du Polychlorure de Vinyle.

#### V-1-Le polychlorure de Vinyle:

Le polychlorure de Vinyle  $\left\{ \begin{array}{c} -\text{CH}_2-\text{CH}- \\ | \\ \text{Cl} \end{array} \right\}_n$  est très utilisé comme isolant (jusqu'à 10 kV environ) et matériau de gaine de protection des câbles de haute tension, d'une part pour son faible prix de revient et d'autre part pour ses bonnes qualités d'isolement électrique [83,90+93].

Le PVC soumis à l'action d'un champ électrique peut être le siège d'une dégradation pouvant s'acheminer à plus ou moins long terme à la rupture de l'isolation.

Le PVC est une matière thermoplastique de synthèse obtenue par polymérisation du monochlorure de Vinyle. Le mécanisme de polymérisation conduit à une courbe de répartition des masses moléculaires gaussienne, asymétrique.

La stéréochimie de la chaîne moléculaire peut présenter plusieurs formes: isotactiques, syndiotactiques, ou atactiques. En pratique les polymères de PVC sont toujours atactiques et leur cristallinité est fonction de l'importance de la phase isotactique (de l'ordre de 5 à 10% en masse) [83,91,92,94].

La difficulté majeure dans la fabrication du PVC destiné à l'isolation électrique réside dans la stabilisation des composés du PVC lequel, généralement, renferme de la résine de PVC et des additifs tels que: charges, plastifiants, stabilisants, lubrifiants, etc...

Les méthodes de fabrication introduisent dans la chaîne du polymère de faibles tâches (spots), lesquelles sont sensibles à la chaleur, la lumière UV, et l'oxygène, entraînant un phénomène de vieillissement lequel est caractérisé par des pertes dans les propriétés mécaniques, électriques, optiques et rhéologiques attribuées à la transformation du PVC. Au sens large "la stabilité du PVC isolant électrique" signifie sa résistance aux variations physiques et chimiques desquelles dépendent les propriétés électriques et mécaniques et bien d'autres. Cependant, il faudrait insister sur le fait que la stabilité du PVC ne dépend pas seulement du composant stabilisant mais aussi des autres additifs qui forment le PVC ainsi que

des différents processus de transformation (extrusion, calandrage, injection, etc).

Jusqu'à nos jours, le phénomène de vieillissement et les techniques de stabilisation du PVC utilisé dans l'isolation électrique sont l'objet de nombreux travaux d'investigations [2,95,96].

Pour nos essais nous avons utilisé des échantillons de PVC destiné à l'isolation de câbles de tension 6/10 kV, et formulés au laboratoire de chimie de l'ENICAB. La réalisation d'une plaque de PVC se déroule en deux étapes:

-Le mélangeage: la résine de PVC et les différents adjuvants sont introduits dans un mélangeur à cylindres du type F-H. PAPANMIER. L'ensemble PVC et adjuvants sont chauffés à la température de 140°C pour une meilleur adhésion des différents composants dans la résine.

-La mise en oeuvre: le mélange ainsi obtenu est découpé en plaques. Chaque plaque est pressée en exerçant une force de 400 kN sous une température de 180°C pendant 5mn pour l'obtention de l'épaisseur désirée. Sorties de la presse, les plaques sont refroidies à la température ambiante.

Les adjuvants introduits dans la résine de PVC sont:

-les plastifiants, qui ajoutés à doses variables (quelques % à quelques dizaines de %) à la résine de PVC vont conférer une souplesse permanente aux produits finis [83,91]. Ils font décaler la température de transition vitreuse initiale du polymère vers les basses températures. En ajoutant 30% de Dioctyle phtalate (DOP) au PVC la température de transition vitreuse  $T_g$  ( $\alpha$ ) se déplace de 74°C à -10°C [80]. Les plastifiants incorporés dans notre PVC sont le Dioctylè phtalate (DOP), le Diisononyle de phtalate (DINP) ainsi que le diisodécyle de phtalate (DIDP).

-les charges: le Carbonate de Calcium traité (B5H) et le Carbonate de Calcium non traité ou naturel (EV) sont incorporés au mélange afin d'améliorer leurs propriétés de résistance électrique, résistance aux chocs tenue à la chaleur, etc. Leur taux d'utilisation est variable suivant l'application prévue (quelques % jusqu'à quelques 100% dans certains cas) [83,91]. En augmentant la charge la température de transition est déplacée vers les basses températures [91].

## V-2-Vieillessement thermique du PVC et histoire thermique:

### V-2-1-Le vieillissement:

On appelle vieillissement tout phénomène (à l'exclusion des phénomènes purement mécanique tels que le fluage ou la fatigue) se traduisant par une évolution lente et irréversible des propriétés du matériau. Le terme vieillissement n'implique pas un mécanisme précis, on est même souvent en présence de phénomènes complexes faisant intervenir simultanément plusieurs mécanismes tels que l'oxydation à température modérée, hydrolyse, migration d'adjuvants,...[83,94].

Le vieillissement est souvent un phénomène de surface, autrement dit le degré de dégradation est plus fort au voisinage de la surface des objets exposés que dans la masse. C'est en général vrai pour les vieillissements thermique et photochimique [83].

L'appréciation de la stabilité du matériau sera donc fonction de l'épaisseur de celui-ci, et du type d'essai pratiqué [83].

### V-2-2-Vieillessement thermique du PVC:

On convient d'appeler vieillissement thermique tout phénomène traduisant une évolution qui ne fait intervenir que:

- le matériau,
- l'atmosphère,
- la température.

Le vieillissement thermique peut faire intervenir des phénomènes purement physiques (dégazage, migration de plastifiants, évolution de la morphologie) ou des phénomènes chimiques parmi lesquels le plus important est l'oxydation. Ces phénomènes peuvent affecter la structure chimique du polymère, ou, dans certains cas, concerner seulement les additifs (problèmes d'incompatibilité d'adjuvants) [83,95]. Le vieillissement est d'autant plus rapide que la température est élevée [83,95].

Nous avons exposé différentes éprouvettes de PVC dans des étuves à différentes températures de vieillissement: 80, 100 et 120°C pendant des durées d'exposition différentes. Pour chaque temps de vieillissement fixé nous effectuons un prélèvement de plaques. Les étuves utilisées pour le vieillissement sont à circulation d'air. L'atmosphère n'étant pas inerte le phénomène de dégradation sera due à l'effet combiné de la température et de l'oxygène. C'est une dégradation oxydo-thermique [2,80,95-97].

### V-2-3-Histoire thermique du PVC:

La structure physique globale ou la texture, du polymère, laquelle est très proche des propriétés macroscopiques, est déterminée par la structure moléculaire et la méthode de transformation, ainsi que l'histoire thermique et thermomécanique de l'échantillon.

Les propriétés macroscopiques des plastiques (polymères) varient avec le temps, pas seulement du fait de l'existence de réactions chimiques, mais aussi à cause des changements subis dans la structure physique, ainsi que certaines propriétés macroscopiques telles que: les contraintes mécaniques, la densité, la conductivité électrique (volumique et surfacique), et les caractéristiques thermiques.

De plus durant le stockage, l'utilisation ou bien la transformation, deux processus de base se développent parallèlement: une modification dans la cristallinité (taille des cristallites, structure des agrégats, charges, volume libre, etc...), et une modification de la structure moléculaire [80,98,99].

Il était admis que les plastiques se solidifient et atteignent une rigidité vitreuse pour des températures de refroidissement inférieures à  $T_g$ . Nous savons actuellement que cette idée est partiellement juste car la solidification n'est pas véritablement achevée dans les limites de la courte période de refroidissement à travers l'intervalle de  $T_g$ , mais continue pour plusieurs années durant la vie pratique et l'utilisation du produit plastique [80,99]. Le matériau est, par conséquent, dit vieillir physiquement. Sa rigidité, sa résistance au fluage, sa fragilité (le matériau devient cassant) croissent, tandis que son amortissement mécanique, les pertes diélectriques, sa conductivité, décroissent [80,98,99].

L'effet du stockage à la température ambiante pour des périodes croissantes a fait le but d'une étude sur le PVC plastifié avec 27,6% de DOP, par Juijn et al (1969) [80]. L'analyse calorimétrique différentielle (DSC) montre un maximum endothermique au dessus de  $T_g$ , lequel est déplacé ( $T_g$ ) vers les hautes températures en augmentant le temps de stockage. Ce décalage est attribué au processus d'aggrégation. Les représentations du module de Young et de la densité en fonction du temps de stockage à la température ambiante montrent que ce processus d'aggrégation progresse sans manifester aucun signe de stabilisation même après 6 mois de stockage [80].

**En conclusion,** le stockage peut être interprété comme un vieillissement dans la structure physique du matériau [80,98].

Il est admis que l'histoire thermique a un certain effet sur les

propriétés macroscopiques, même sur les réactions chimiques en cours dans le polymère [80,99,100].

Un prétraitement thermique ou un éventuel recuit influent sur certaines propriétés macroscopiques (fluage par exemple) et sur l'allure de la courbe de rigidité diélectrique d'un matériau [80,99,100].

Le temps de recuit ainsi que la température de recuit influent aussi sur certaines propriétés telles que le fluage, le module de Young, la rigidité diélectrique, etc... Il a été vu qu'un chauffage d'un matériau détruit en premier lieu la "structure formée lors du stockage" antérieur de ce même matériau [99].

Le recuit affecte en premier lieu la mollesse, mais dès que la température et le temps de recuit augmentent un phénomène inverse se produit à savoir la solidification ou la raideur du matériau [98].

Nos plaques de PVC vieilles aux températures de 80 et 120°C ont été stockées à la température ambiante pendant une période de deux années environ tandis que celles vieilles à la température de 100°C ont été stockées durant 6 mois dans les mêmes conditions. Lors de la réalisation de nos éprouvettes pour les essais électriques, nous avons dû effectuer un recuit à la température de 160°C pendant une heure pour faciliter l'insertion des aiguilles.

### V-3-Mesure des tensions et des temps de rupture du PVC vieilli thermiquement:

L'idée originale était d'effectuer des mesures sur la phase de propagation des arborescences électriques dans le PVC vieilli thermiquement. Nous avons effectué des mesures de décharges sur un échantillon de PVC non vieilli, dont la distance interélectrode est de deux millimètres, sous pallier de tension constant de  $2 \text{ kV}_{\text{eff}}/5\text{min}$  moyennant la détection des impulsions de courant liées aux décharges dans l'arborescence électrique naissante. La figure V-1 représente l'amplitude maximale des décharges en fin de pallier en fonction du temps d'application de la tension (c'est-à-dire 5 min pour chaque pallier). La tension est ramenée à zéro avant le claquage afin d'observer l'échantillon. Il vient d'une telle représentation que les phases d'initiation et de propagation de l'arborescence électrique dans le PVC ne peuvent être discriminées l'une de l'autre car les niveaux de décharges sont trop importants, révélateurs de sièges de décharges à l'origine dans le matériau.

L'observation sous microscope optique d'une éprouvette coupée perpendiculaire à la direction de propagation de l'arborescence électrique

nous révèle la présence de vacuoles assez importantes, visibles à l'oeil nu. Le cliché de la figure V-2 met en évidence la présence de plusieurs tâches (spots). Ces spots sont dus soit à des prolongements de l'arborescence (arbre ramifié), soit à des défauts de structure (lors de la transformation de la résine), soit à la nature même du matériau (cristallinité). Ces spots peuvent être à leur tour sièges de décharges initiatrices d'arborescence.

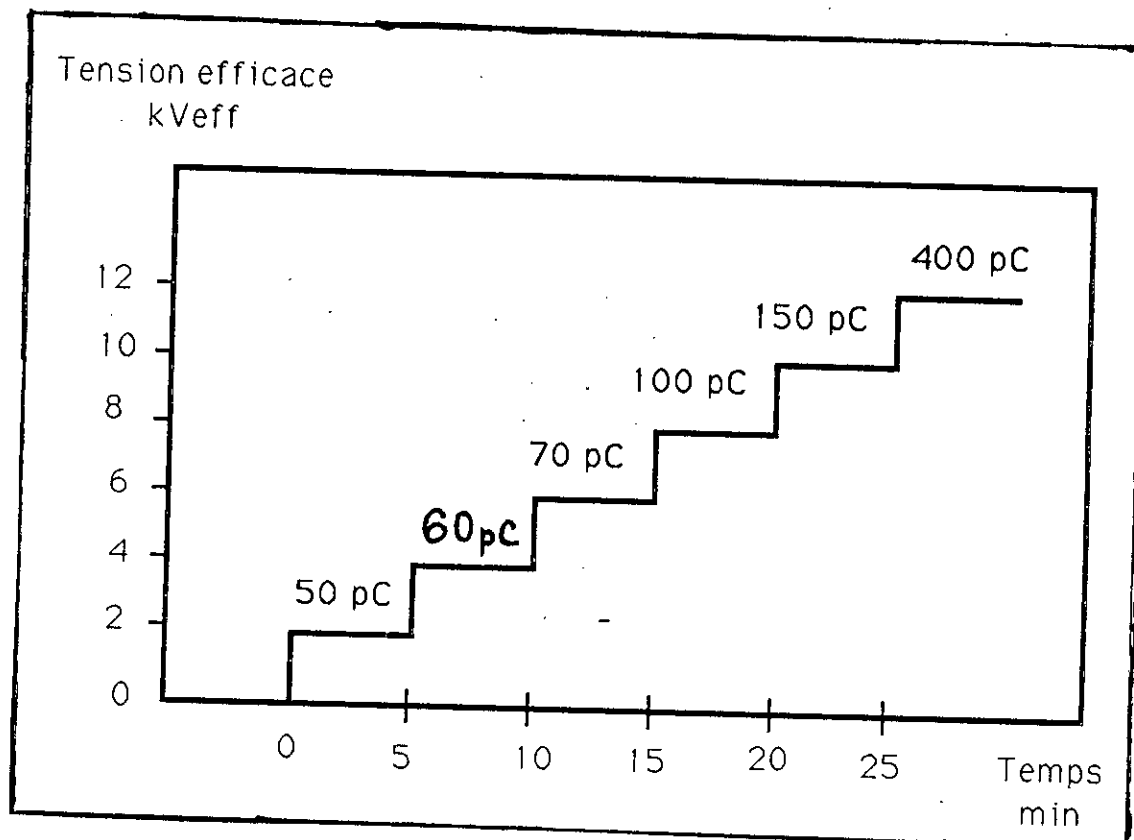


Figure V-1: Amplitude maximale des décharges en fin de palier.





Figure V-2: Forme d'une arborescence électrique dans un échantillon de PVC non vieilli.

Etant donné que la phase d'initiation ne peut être dissociée de la phase de propagation, vu le niveau trop élevé des décharges, et comme l'étude de la phase de propagation est très fastidieuse et nécessite pour une température et une durée de vieillissement données un nombre d'essai assez important, nous avons donc opté pour la mesure des tensions et temps de rupture. car la rupture est la phase finale de la propagation de l'arborescence électrique.

Pour une température de vieillissement et un temps de vieillissement donnés, nous effectuons quatre essais en moyenne sur des éprouvettes de PVC, dont la distance interélectrode est en générale pour tous les échantillons de deux millimètres, et dans d'autres cas variables (voir tableau V-1A et V-1B). Nous appliquons des palliers croissants de  $2 \text{ kV}_{\text{eff}}/15\text{min}$  et nous relevons pour chaque éprouvette essayée le niveau de tension de rupture ainsi que le temps de rupture lui correspondant. Des essais préliminaires ont été effectués sur des éprouvettes en faisant varier la durée d'application de la tension soient 5, 10 ou 15 min. Pour les durées d'application de 5 et 10 minutes les éprouvettes claquaient trop rapidement car la transition est trop rapide. Donc nous avons finalement choisi la durée de 15 minutes pour l'application de la tension. Le niveau

2 kV<sub>eff</sub>/15min a été supprimé car jugé non significatif.

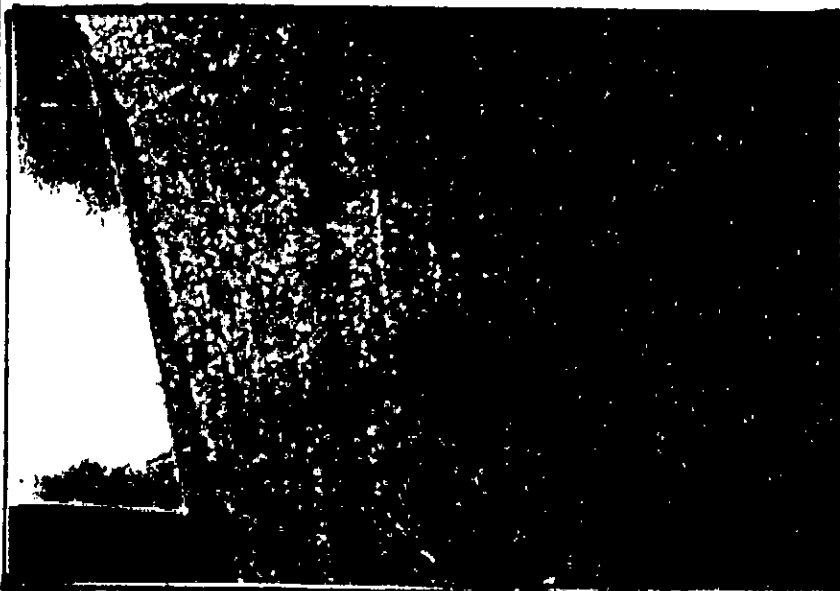
Après claquage d'un échantillon (n°7) vieilli à la température de 80°C pendant 500 heures, nous avons effectué une coupe perpendiculaire à la direction de l'arborescence sur cet échantillon et observé sous microscope optique. Les différents clichés sont portés à la figure V-3. Nous relevons sur les clichés la présence d'arborescences qui se sont développées dans d'autres parties du matériau indépendamment de celle qui a résulté de la simulation, ainsi que la présence de plusieurs tâches (spots). Ces dernières résultent soit des processus de fabrication et de transformation du PVC, soit des prolongements de l'arborescence, soit ils sont dus à la nature même du matériau. Le canal de rupture de l'arborescence présente un diamètre de 0,3µm.

Temp. vieil ( $^{\circ}\text{C}$ )	No Ech	Dist. interél d(mm)	Temps vieil $t_v$ (h)	$E_r$ (MV/mm)	$V_r$ ( $\text{kV}_{\text{eff}}$ )	$t_r$ (s)
80	1	3.0	200	2.05	17.9	7440
//	//	0.5	//	0.26	1.8	30
//	//	2.0	//	1.07	8.96	3600
80	2	3.0	250	2.05	17.9	11640
//	//	2.0	250	1.29	10.75	3660
//	//	0.5	250	0.33	2.26	60
80	3	2.0	300	1.43	12.0	3933
//	//	2.0	300	0.86	7.17	2170
80	4	2.0	350	1.07	8.96	2790
//	//	//	//	1.29	10.75	3900
//	//	//	//	1.29	10.75	3840
//	//	//	//	1.07	8.96	2880
//	//	//	//	1.29	10.75	4089
//	//	//	//	1.29	10.75	3991
80	5	2.0	400	1.53	12.54	4800
//	//	//	//	1.53	12.54	4680
//	//	//	//	1.29	10.75	3780
//	//	//	//	1.53	12.54	4700
//	//	//	//	1.53	12.54	4890
80	6	2.0	450	1.71	14.32	5430
//	//	//	//	1.53	12.54	4809
//	//	//	//	1.92	16.11	6390
//	//	0.5	//	0.52	3.6	5
80	7	2.0	500	1.53	12.54	5100
//	//	//	//	2.13	17.60	7820
//	//	0.5	//	0.50	3.45	15
//	//	1.0	//	0.80	6.15	960

Tableau V-1A: Résultats de mesures des tensions et temps de rupture (rayon de courbure de l'électrode 3  $\mu\text{m}$ ).

Temp. vieil (°C)	NO Ech.	Distance interél. (mm)	Temps vieil. (h)	$E_r$ (MV/mm)	$V_r$ ( $kV_{eff}$ )	$t_r$ (s)
100	1	2.0	648	1.07	8.96	2710
//	//	//	//	1.29	10.75	3900
//	//	//	//	1.29	10.75	4260
//	//	//	//	1.07	8.15	2160
100	2	2.0	1015	1.45	12.17	4140
//	//	//	//	1.92	16.11	6445
//	//	//	//	//	//	6335
//	//	//	//	//	//	6400
//	//	//	//	//	//	6390
100	3	2.0	1560	1.92	16.11	6940
//	//	//	//	2.35	19.69	8580
//	//	1.5	//	0.76	6.15	1980
//	//	//	//	//	//	1200
100	4	2.0	2012	1.07	8.96	3000
//	//	//	//	2.35	19.69	8550
//	//	//	//	1.45	12.17	3900
//	//	//	//	1.45	12.17	3660
100	5	2.0	2643	1.92	16.11	6360
//	//	//	//	1.53	12.54	5100
//	//	//	//	1.92	16.11	6360
//	//	//	//	1.29	10.75	3780
100	6	2.0	3660	1.53	12.54	4510
//	//	//	//	1.53	12.54	4740
//	//	//	//	1.07	8.96	3300
//	//	1.5	//	0.89	7.17	2520
//	//	2.0	//	1.53	12.54	4600
//	//	//	//	1.53	12.54	4500
PVC	1	6.0		2.09	20.00	6900
non	2	3.0		1.58	14.00	2100
vieil	3	2.0		1.92	16.11	6375

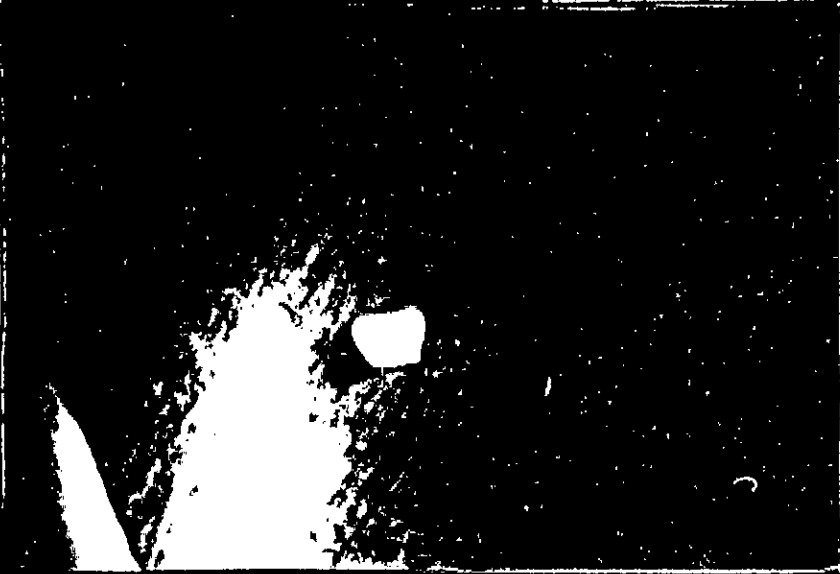
**Tableau V-1B:** Résultats de mesures des tensions et temps de rupture (rayon de courbure de l'électrode 3  $\mu$ m).



Cliché 1: Observation en microscope électronique à balayage d'un échantillon de PVC vieilli à 80°C durant 500h (x 5).



Cliché 2: Observation en microscope électronique du même échantillon. Présence de spots (x 20).

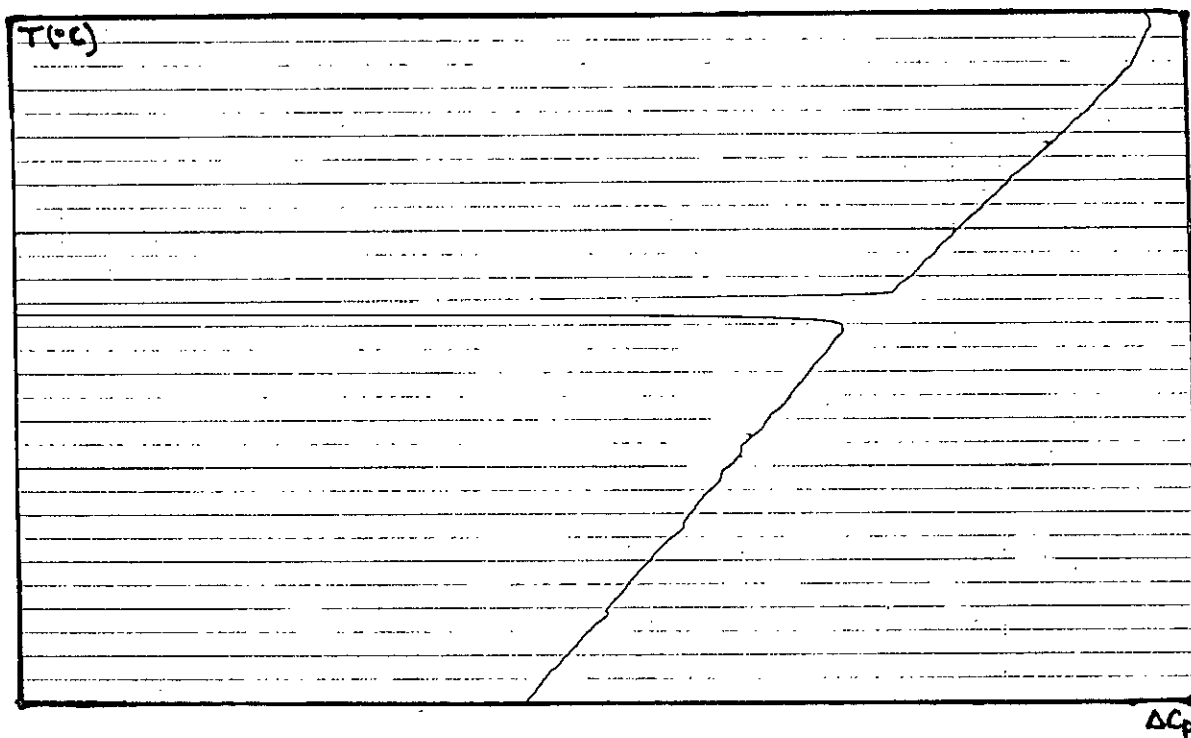


Cliché 3: Observation en microscope électronique à balayage d'un canal d'arborescence. Diamètre du canal  $\sim 0,3 \mu\text{m}$ .

Figure V-3: Etat d'un échantillon de PVC vieilli à la température de 80°C pendant 500 h après claquage.

#### V-4-Mesure des températures de transition vitreuse:

La détermination de la température de transition vitreuse est réalisée par analyse calorimétrique différentielle (DSC) à l'aide du dispositif Perkin-Elmer de la figure III-6. La vitesse de montée et de refroidissement est fixée à 8°C/min, nous avons effectué un balayage en température de -40°C à +120°C. Nous avons utilisés deux matériaux purs comme référence possédant chacun une température de fusion de 65 et 90°C. La figure V-4 donne la courbe de DSC d'un échantillon de PVC sur laquelle on observe une variation abrupte de la ligne de base.



**Figure V-4:** Thermogramme d'un échantillon de PVC vieilli à la température de 100°C pendant 2643 h.

Les résultats de mesure de la transition vitreuse sont récapitulés dans le tableau V-2.

Température de vieillissement $T_v$ (°C)	Temps de vieillissement $t_v$ (h)	Température de transition vitreuse $T_g$ (°C)
80	450	69.25
80	500	104.25
100	648	52.89
100	1015	84.89
100	1560	115.27
100	2012	81.11
100	2643	71.60
100	3660	42.09
120	216	38.91
120	696	6.67
PVC non vieilli		-7.43

Tableau V-2: Résultats de mesures de la température de transition vitreuse du PVC vieilli et non vieilli.

#### V-5-Traitement statistique de la rupture dans le PVC:

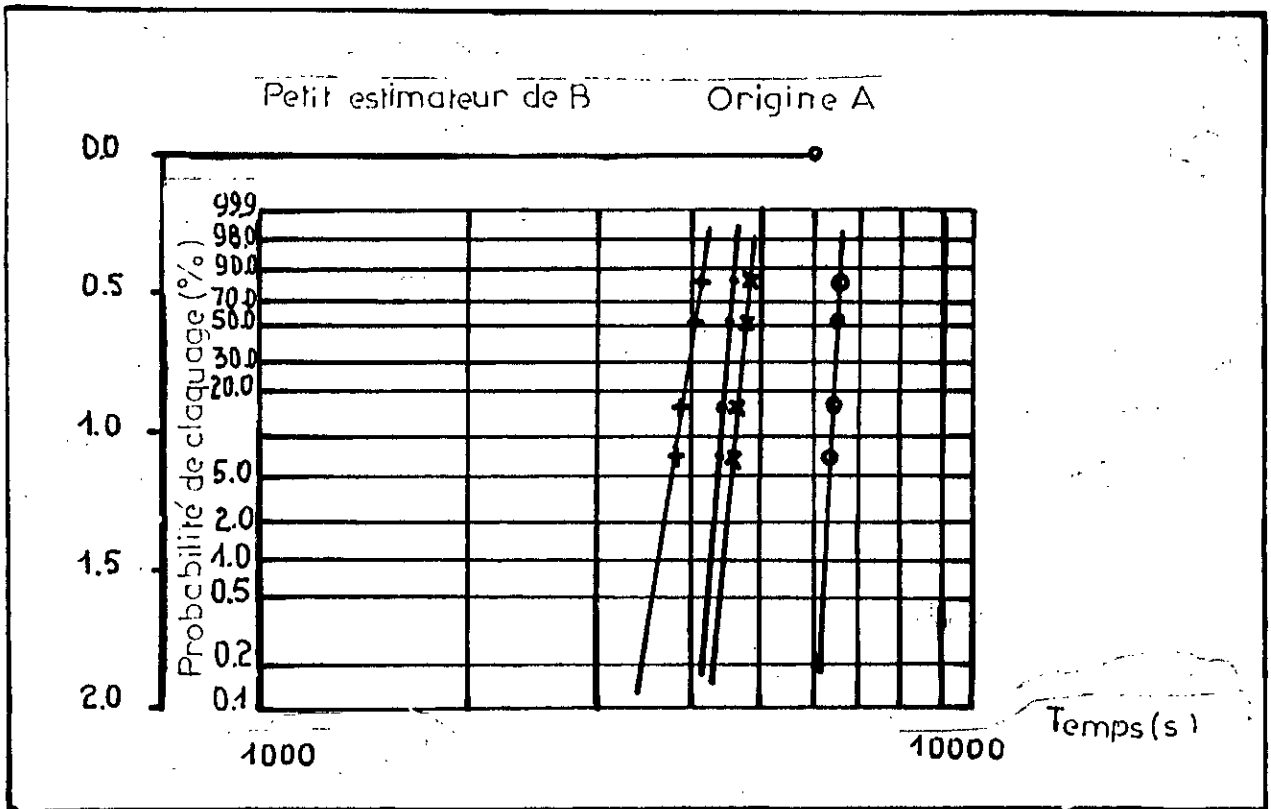
Les essais étant effectués sous palier croissant de  $2 \text{ kV}_{\text{eff}}/15\text{min}$ , nous ne prendrons en considération, pour une température et un temps de vieillissement donnés, que les éprouvettes qui auront claqué pour un même niveau de tension.

Les mesures ont été faites pour deux températures de vieillissement et pour chacune d'entre elles deux temps de vieillissement seulement ont été considérés.

Pour un champ de rupture donné, nous classons les temps de claquage par ordre croissant, et nous attribuons au temps  $t_i$  ( $i=1, \dots, n$  ( $n$  étant le nombre total d'éprouvettes)) la probabilité  $P_i$  donnée par la relation (A-4).

$$P_i = 100 \left[ \frac{0,69}{n} + (i-1) \left( \frac{1}{n-1} - \frac{1,38}{n(n-1)} \right) \right] \quad (\text{A-4})$$

Nous portons l'ensemble des points expérimentaux ( $t_i, \ln(1/1-P_i)$ ) sur une échelle Allan-Plait pour une détermination rapide des paramètres d'échelle  $t_0(m)$  et de forme  $\beta(m)$ , (figure V-5).



**Figure V-5:** Représentation des données de vieillissement d'échantillon de PVC sur du papier de probabilités de Weibull.

L'estimation de  $t_0(m)$  est donnée par le temps correspondant à  $F(t) = 63,2\%$ .

L'estimation  $\beta(m)$  consiste à mener à partir du point "origine A" une parallèle à la droite ajustée. L'intersection de cette parallèle avec l'axe appelé "petit estimateur de beta" donnera la meilleure estimation de  $\beta(m)$ .

Dans le tableau V-3 sont portés les différentes valeurs de  $t_0(m)$  et de  $\beta(m)$ .



Température de vieill. $T_v$ (°C)	Temps de vieill. (h)	$V_r$ (kV <sub>eff</sub> )	Durée de vie $t_0$ (s)	Paramètre de forme $\beta$
80	350 (+)	10.75	4040	≈ 13
80	400 (x)	12.54	4819	≈ 14
100	1015 (o)	16.11	6514	≈ 15
100	3660 (*)	12.54	4623	≈ 16

**Tableau V-3:** Valeurs des paramètres d'échelle  $t_0$  et de forme  $\beta$  du PVC vieilli.

La méthode graphique nous a permis de vérifier rapidement que la distribution de Weibull est bien adéquate (figure V-5). Dans tous les cas considérés le paramètre de forme  $\beta$  est supérieur à 1, ce qui correspond à un vieillissement normal donc à une fatigue nulle à l'origine et qui s'accroît dans le temps. Pour établir d'autres critères de comparaison, par exemple étudier l'évolution de la durée de vie, il aurait fallu effectuer d'autres types d'essais "dynamiques" ou "statiques", dans ce cas pour une rampe ou une tension donnée, mesurer les temps de claquage et comparer pour une température de vieillissement donnée cette évolution en fonction du temps de vieillissement, ou bien pour un temps de vieillissement donné comparer la variation de la durée de vie en fonction des températures de vieillissement. Donc pour la durée de vie de notre matériau nous ne pouvons rien conclure à l'issue des essais effectués.

#### V-6-Détermination du champ électrique dans le PVC:

Le champ électrostatique en pointe d'électrode, qui est aussi le champ maximum dans la configuration adoptée pour le PVC (pointe-plan) a été calculé à partir de la tension de claquage d'après la formule établie par Mason dans l'étude présentée par Griac et al [89]:

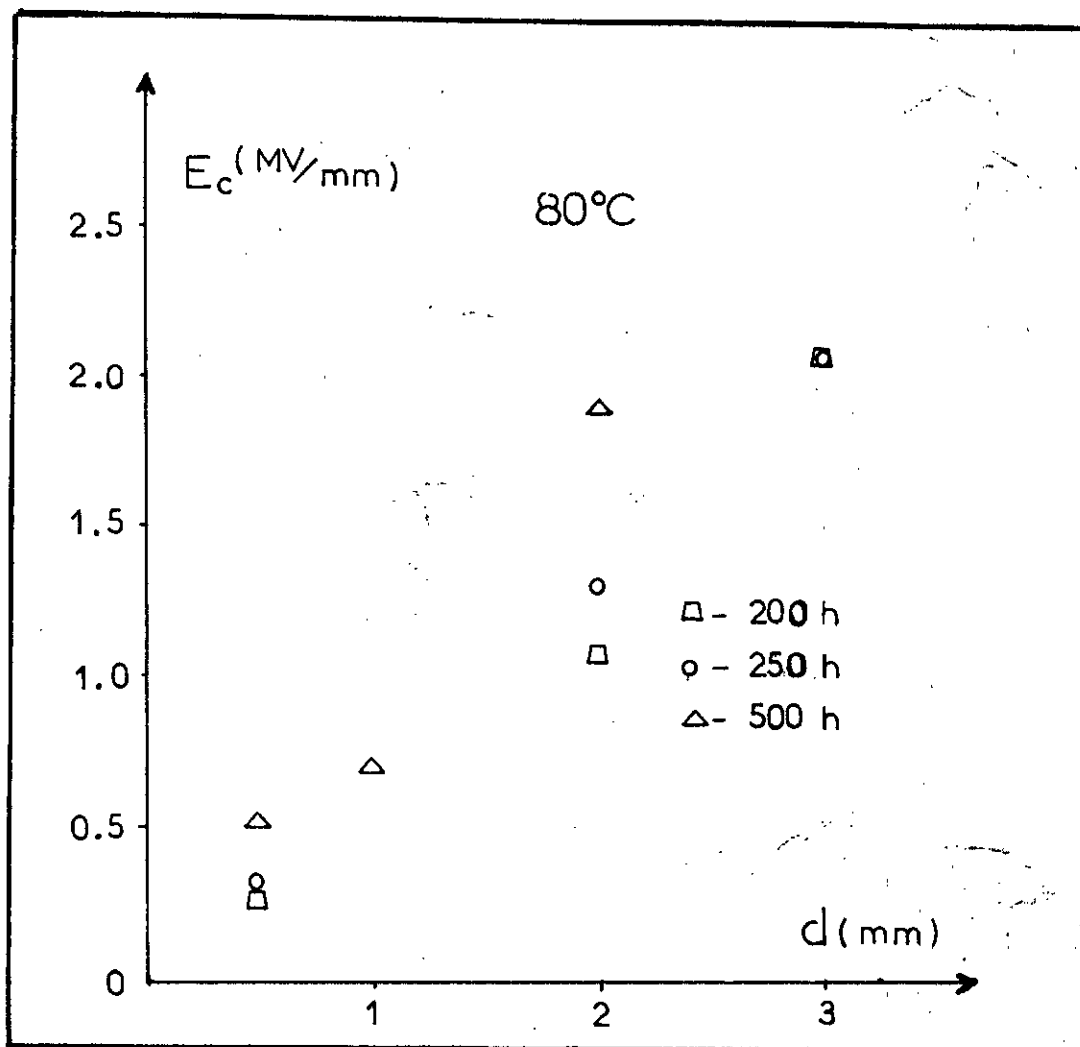
$$E_{\max} = \frac{2 V}{r \ln \left[ 1 + \frac{4d}{r} \right]} \quad (V-4)$$

La représentation champ de claquage-distance interélectrode (figure V-6) pour le PVC vieilli à la température de 80°C pour trois temps de vieillissement montre que selon la procédure adoptée, le champ augmente quand la distance interélectrode croît aussi. Ce résultat est prévisible, vu que la distance parcouru par les porteurs de charges est de plus en plus grande.

Les valeurs du champ de rupture sont distribuées de 3,3 MV/cm à 20,5 MV/cm. Elles intègrent l'effet de deux variables champ et temps.

Pour une distance interélectrode donnée la valeur du champ de

rupture augmente sensiblement avec le temps de vieillissement. Ce phénomène résulte d'une meilleure rigidité diélectrique acquise par le matériau vieilli pour des temps courts, il sera mis en évidence dans les paragraphes qui suivront.



**Figure V-6:** Champ électrostatique de rupture en fonction de la distance interélectrode.

#### V-7-Modélisation du phénomène de vieillissement du PVC:

L'application des modèles tels que les modèles de Fallou ou de Ramu nécessite d'une part des résultats de vieillissement à plusieurs températures, d'autre part des contraintes combinées. C'est aussi le cas de la représentation géométrique de Simoni. Cependant, ce dernier pour une température constante, aboutit à la droite de durée de vie donnée par le Modèle de Puissance Inverse. Vu la procédure adoptée (pallier croissant de  $2 \text{ kV}_{\text{eff}}/15\text{min}$ ), nous ne pouvons appliquer tous les modèles énumérés.

Le modèle statistique de Montanari est impossible à appliquer car

il nécessite un grand nombre d'essais afin de mettre en évidence un champ seuil. Dans la limite des mesures effectuées, il nous est impossible d'affirmer que notre matériau montre une tendance vers un champ seuil.

#### V-7-1-Application du Modèle de Crine:

Pour des valeurs de champs électriques élevées ( $E > E_c$  où  $E_c$  est le champ critique), la relation entre le temps et le champs de claquage donnée par ce modèle est:

$$t = \frac{h}{kT} \exp \left[ \frac{\Delta G - e\lambda E}{kT} \right] \quad (\text{II-36})$$

Les valeurs de l'énergie libre  $\Delta G$  et de la largeur de la barrière  $\lambda$  se déduisent respectivement de l'ordonnée à l'origine et de la pente de la droite:

$$\ln t = \ln \frac{h}{kT} + \frac{\Delta G}{kT} - \frac{e\lambda}{kT} E \quad (\text{II-37})$$

Le champ critique  $E_c$  est donné par:

$$E_c = \frac{E_{coh}}{e\lambda_{max}} \quad (\text{II-38})$$

Où  $E_{coh}$  désigne l'énergie de cohésion du matériau. D'après cette équation le champ critique définie par Crine est proportionnel à l'énergie de cohésion.

Ce modèle s'applique à des contraintes (champ et température) combinées. Il est valable pour la température ambiante. C'est notre cas, car notre matériau a été préalablement vieilli aux températures de 80 et 100°C, et les essais effectués sous champ électrique à la température ambiante du bain d'huile.

Les représentations des différents résultats de vieillissement dans le diagramme  $\ln t = f(E)$  sont données aux figures V-7,8,9. De ces représentations sont déduites les valeurs de  $\Delta G$  et  $\lambda$  qui sont fonction de la température et du champ [64,101], ainsi que de la morphologie du polymère [68,101].

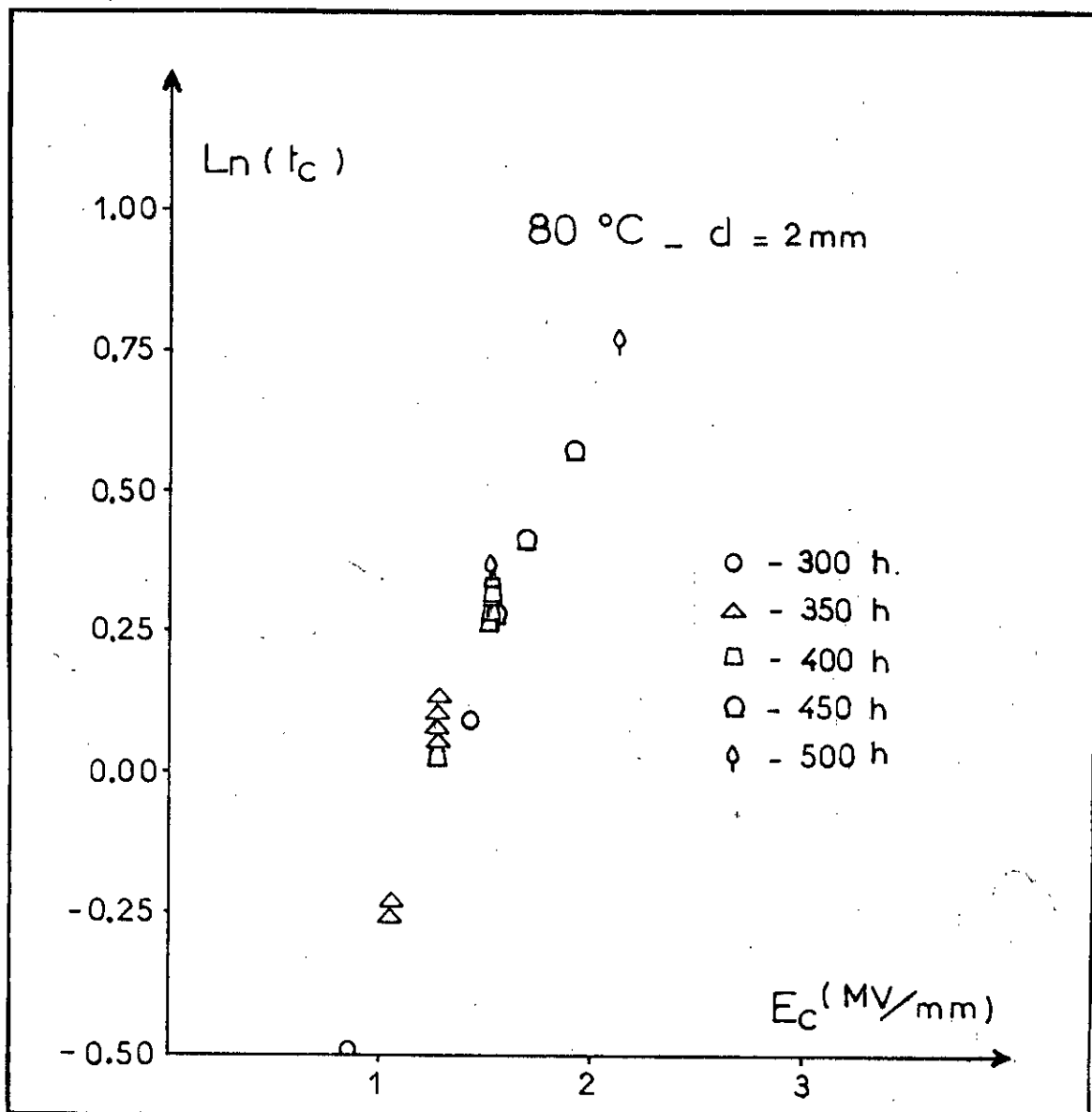
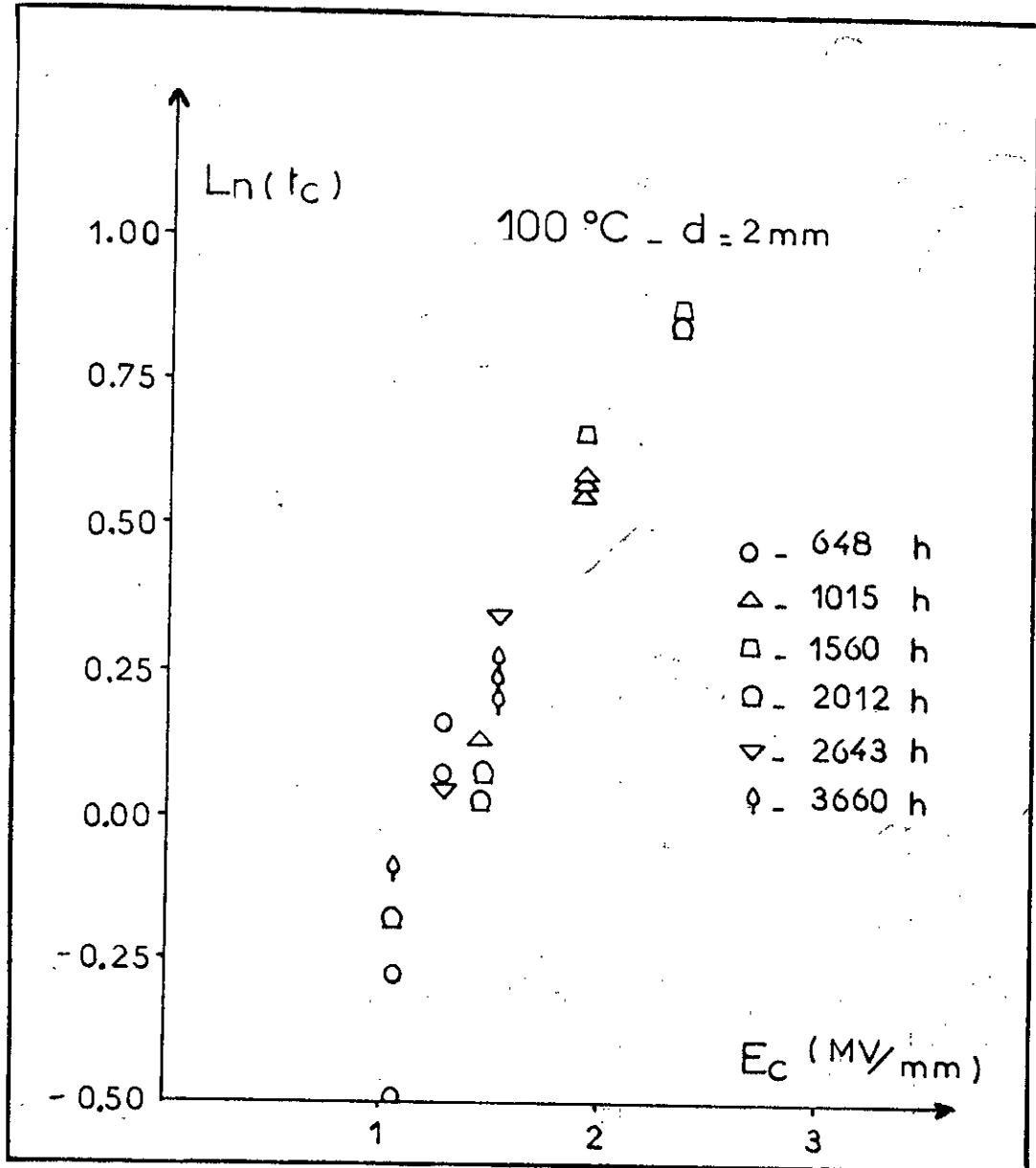


Figure V-7: Représentation  $\ln t_c = f(E_c)$  pour le PVC vieilli à la température de 80°C, pour des durées différentes.



**Figure V-8:** Représentation  $\ln t_c = f(E_r)$  pour un PVC vieilli à la température de 100 °C pour différentes durées de vieillissement.

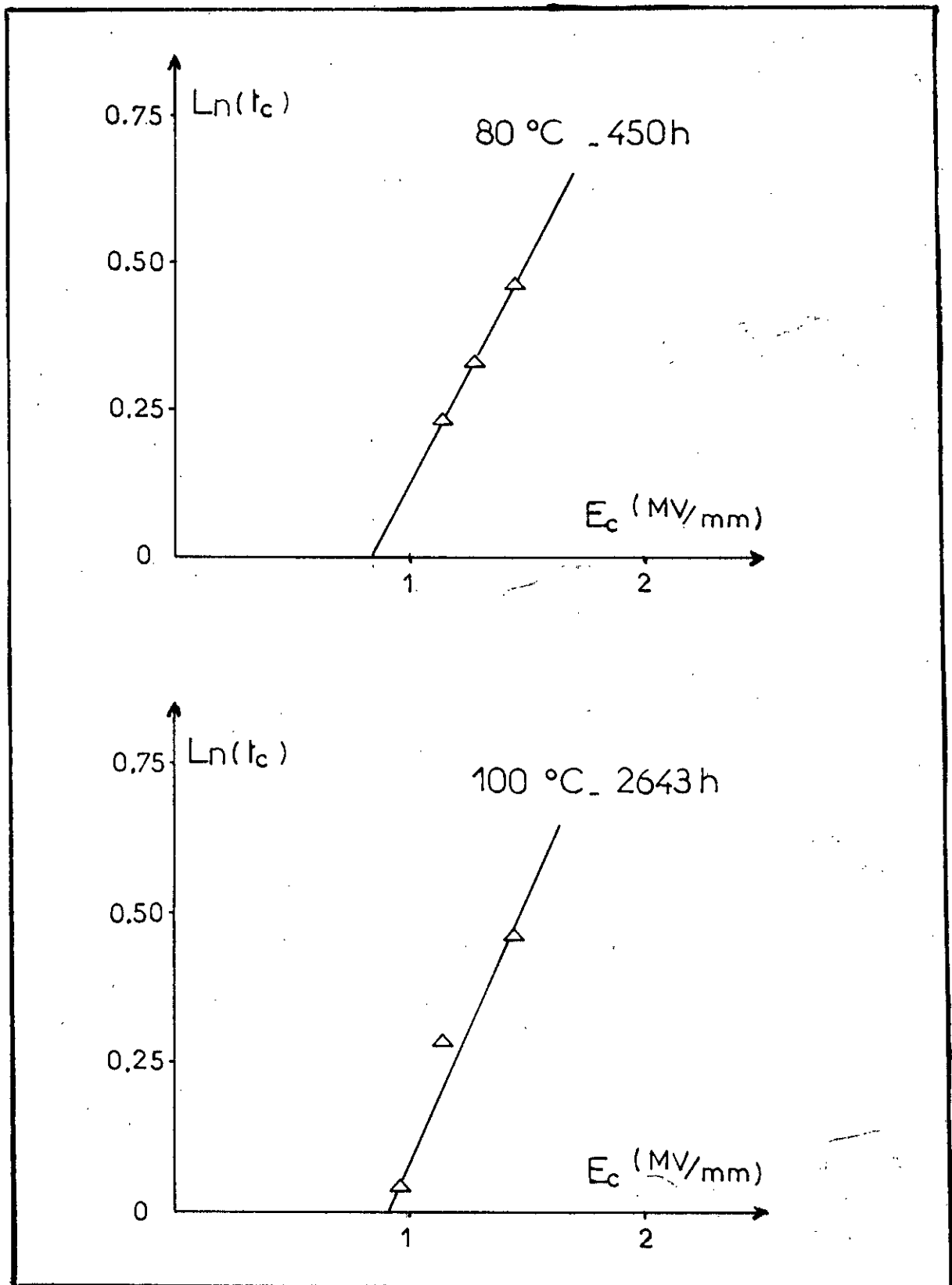


Figure V-9: Exemple de détermination des différentes valeurs de  $\Delta G$  et  $\lambda$ .

Les variations de  $\Delta G$  et de  $\lambda$  en fonction du temps de vieillissement sont portées aux figures V-10,11.

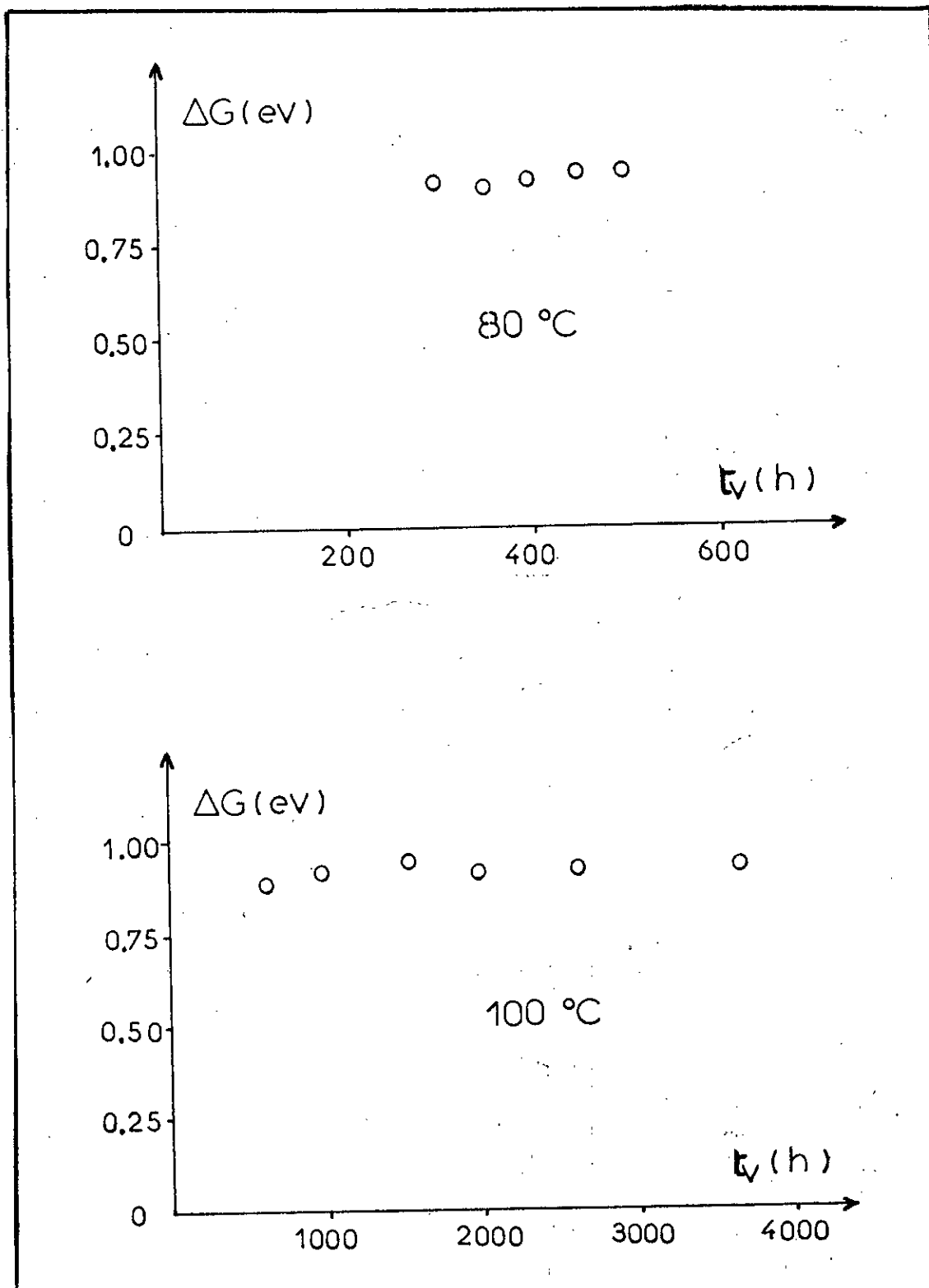


Figure V-10: Variation de  $\Delta G$  en fonction du temps de vieillissement pour les températures de 80 et 100 °C.

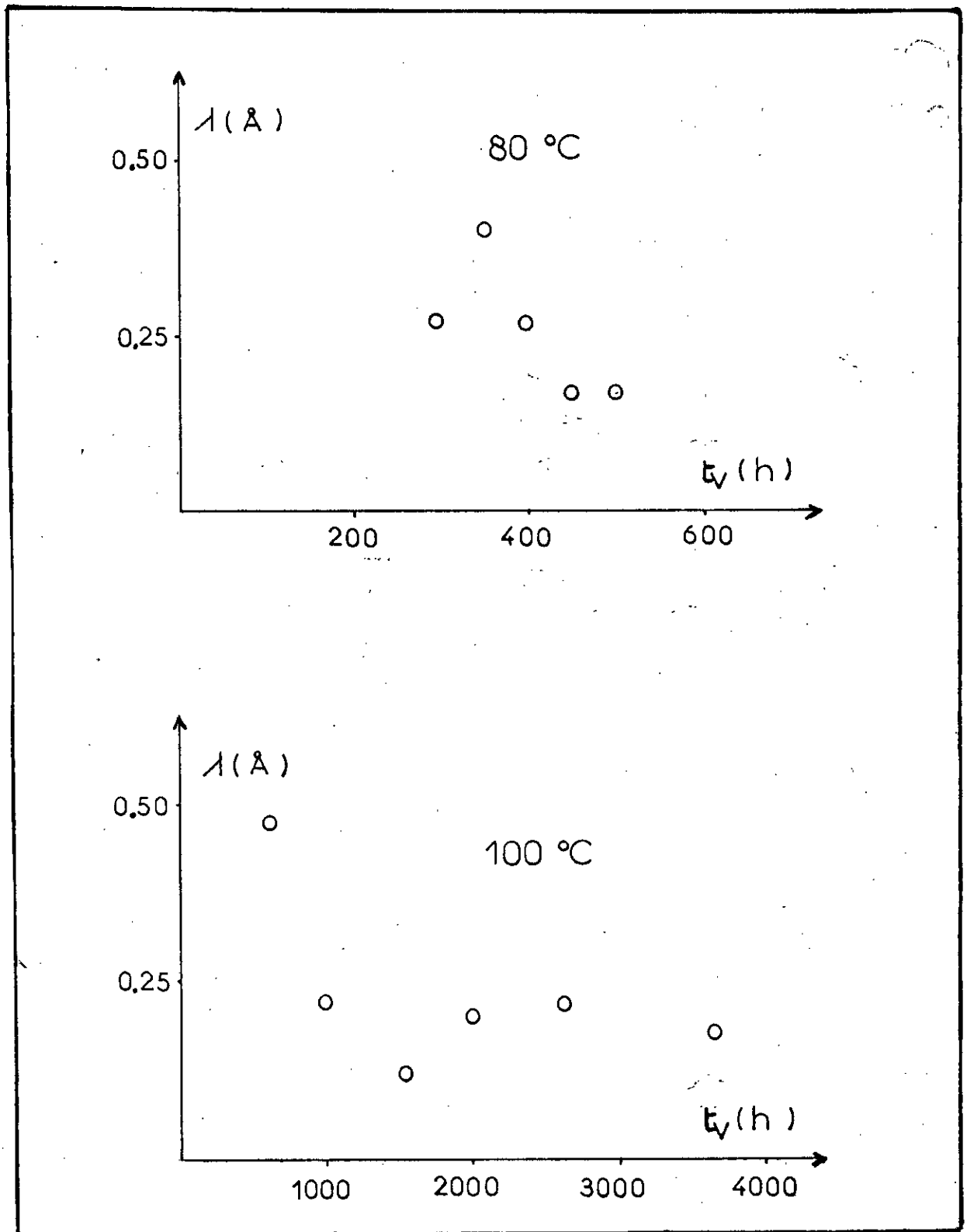


Figure V-11: représentation de  $\lambda$  en fonction du temps de vieillissement pour les températures de 80 et 100 °C.



Pour la température de vieillissement de 80°C et des temps de vieillissement variant de 300 à 500 heures, nous observons une très légère variation de  $\Delta G$ , presque imperceptible, et une diminution de la valeur de  $\lambda$ .

Par contre, pour des périodes de vieillissement de 600 à 3600 heures, et une température de vieillissement de 100°C, l'énergie libre  $\Delta G$  montre une légère augmentation jusqu'à  $t_v = 1560h$ , puis diminue de nouveau. Un phénomène inverse est observé pour les variations de  $\lambda$ , qui atteint sa plus petite valeur pour  $t_v = 1560h$ .

Il est évident que des changements dans la morphologie de notre matériau se sont opérés comme nous le verrons plus loin.

La dégradation thermique d'un polymère est influencée par deux facteurs principaux [102]:

-la température qui, en s'élevant, a pour effet de rendre accessible à un plus grand nombre de systèmes les niveaux d'énergie correspondant à une rupture de liaison.

-la nature des liaisons dans la chaîne macromoléculaire. En particulier, tout défaut de constitution de la chaîne peut entraîner un abaissement du niveau d'énergie nécessaire à la réaction de décomposition et, par la même, contrôler la stabilité thermique du polymère.

Pour un vieillissement à la température de 100°C, l'énergie nécessaire à franchir la barrière de potentiel, initialement augmente avec le temps de vieillissement, ce qui correspond à une meilleure rigidité du matériau [90] pour atteindre une valeur limite puis diminue de nouveau quand la période de vieillissement croît, car la rigidité du matériau décroît elle aussi de la même manière [90]. Ce phénomène sera mis en évidence dans les paragraphes qui suivront.

Nous ne pouvons en dire autant pour la température de 80°C car notre plage de variation des temps de vieillissement n'est pas aussi étendue. Mais à prime abord, nous observons une légère augmentation de l'énergie libre pour les temps expérimentés, ce qui correspond à une nette amélioration de la rigidité diélectrique du matériau [90].

Quant à la valeur de  $\lambda$  qui doit être au maximum égale à la longueur de la phase amorphe, nous pouvons dire que la diminution initiale de cette valeur est due au phénomène de réticulation qui résulte de la déshydrochloruration (réaction d'élimination de HCl) du PVC vieilli thermiquement, ainsi qu'à la perte de plastifiants. La valeur de  $\lambda$  augmente sensiblement après une durée de vieillissement de 1560h. Nous

supposons qu'à partir de cet instant d'autres phénomènes interviennent telles que la réticulation et les ruptures de chaînes.

Nous ne pouvons comparer ce résultat obtenu pour une température de 100°C à celui obtenu pour la température de 80°C vu que les périodes de vieillissement ne coïncident pas. Nous pouvons seulement dire que  $\lambda$  a tendance à diminuer et cette décroissance dans la valeur de  $\lambda$  est attribuée au même processus à savoir la réticulation.

En conclusion, nous avons essayé de montrer que le modèle de Crine peut être appliqué à l'étude du vieillissement de notre matériau (PVC). Une explication qualitative quant au sens des grandeurs déterminées, à savoir l'énergie de Gibbs et la longueur des submicrocavités de la phase amorphe  $\lambda$ , est suggérée et est reliée à la durée du vieillissement et au changement de la morphologie du PVC vieilli à savoir la réticulation, la réticulation et la rupture de chaîne dans le matériau.

#### V-8-Essais d'interprétation du mécanisme régissant le claquage:

##### V-8-1-Résultats de mesure:

Les mesures des tensions et des temps de rupture ont été faites à l'aide du dispositif de la figure (III-5) selon la procédure déjà décrite (pallier croissant de 2 kV<sub>eff</sub>/15min).

Les essais ont été faits seulement pour les températures de vieillissement de 80 et 100°C. Il nous a été impossible d'effectuer des essais électriques pour la température de 120°C vu que l'épaisseur de nos plaques étaient de deux millimètres, épaisseur trop faible pour l'insertion des pointes.

Les représentations tension de rupture (valeur moyenne) et temps de rupture (valeur moyenne) en fonction du temps de vieillissement sont portées aux figures V-12,13.

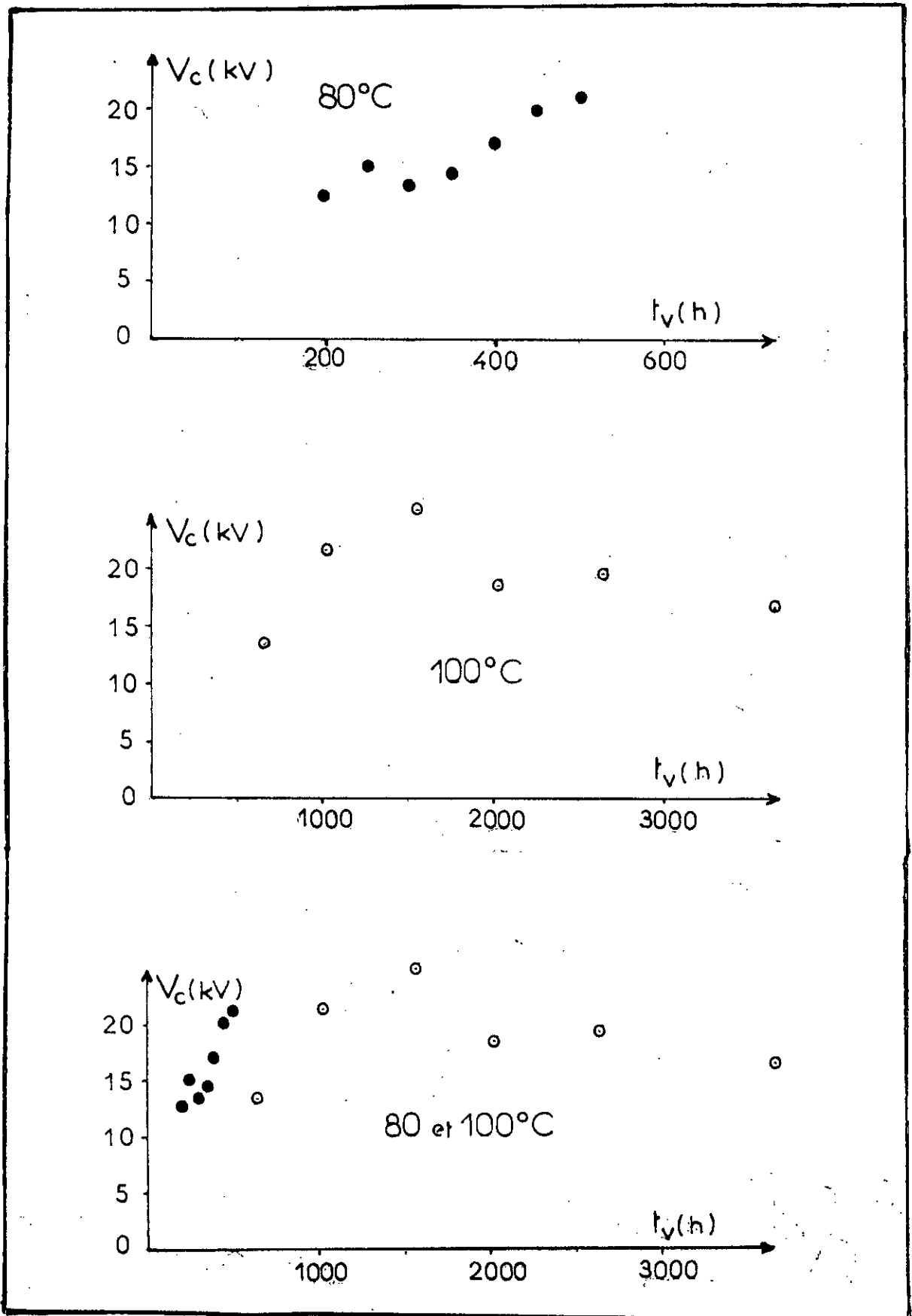
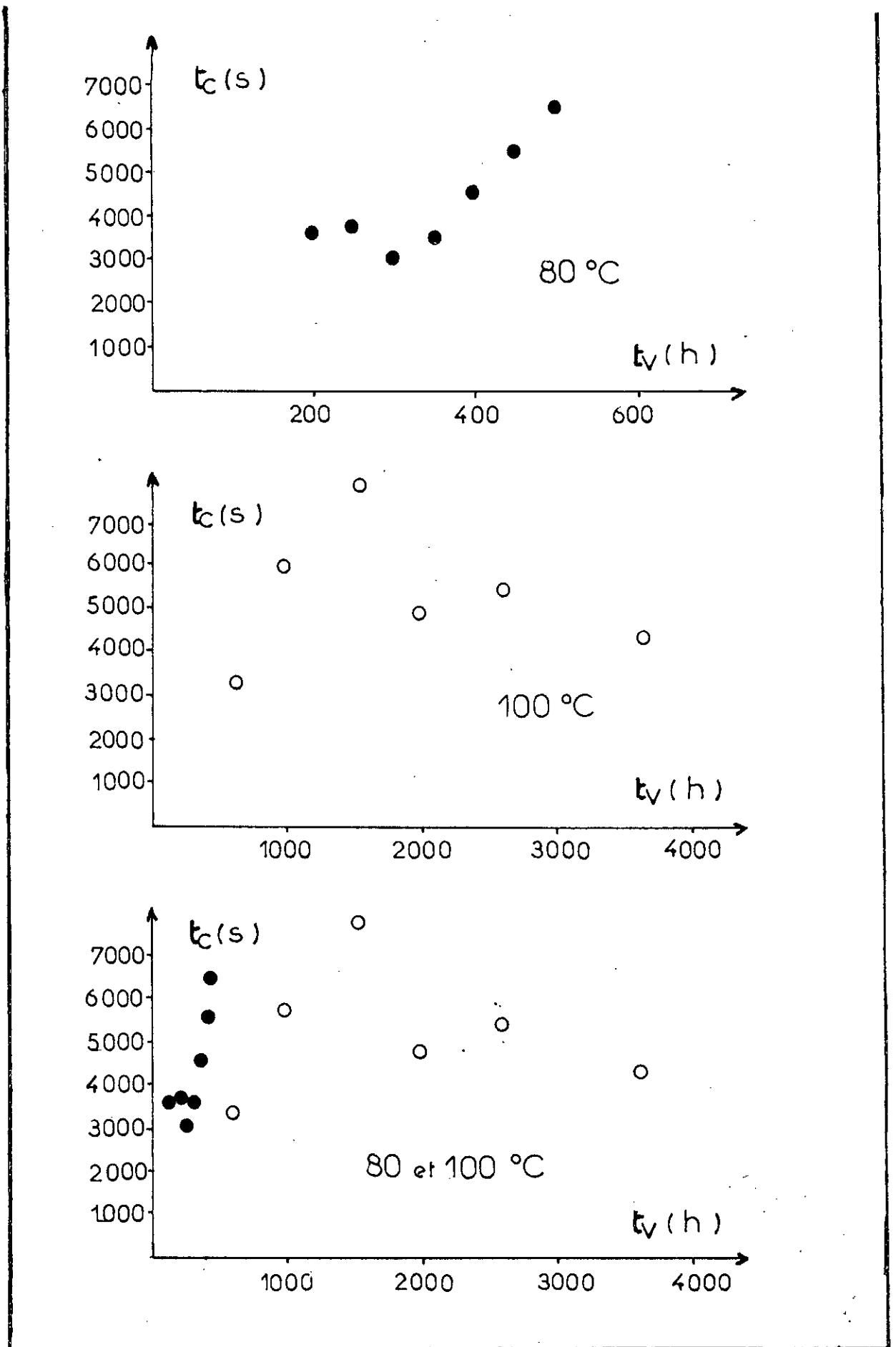


Figure V-12: Représentation tension de rupture en fonction de la durée de vieillissement pour des vieillissements à 100 et 80°C.



**Figure V-13:** Représentation temps de rupture en fonction de la durée de vieillissement pour des vieillissements de 100 et 80°C.

Pour la température de 80°C, la tension de rupture augmente avec le temps de vieillissement (dont la période maximale est de 500h). Ce résultat est attendu étant donné que la rigidité diélectrique du matériau vieilli à la même température durant la même période présente la même allure [90]. Il en est de même pour les temps de rupture. Ce temps tend à augmenter avec la durée de vieillissement. Il est interprété par une meilleure rigidité acquise par le matériau. Un matériau rigide résiste plus et pendant longtemps à l'action d'un champ électrique [80,90,91].

Les périodes de vieillissement à la température de 100°C sont plus importantes. Il en résulte une modification dans les allures de la tension de rupture et du temps de rupture. Nous observons d'abord une nette augmentation dans les valeurs des tensions de rupture et des temps de rupture dont les valeurs maximales sont atteintes pour une durée de vieillissement de 1560h, puis une diminution plus ou moins abrupte de ces valeurs. Ce résultat est prévisible vu que la variation de la rigidité diélectrique en fonction de la période de vieillissement pour la même température de vieillissement suit la même allure. La valeur maximale de la rigidité diélectrique est atteinte pour la même durée de vieillissement, c'est-à-dire 1500h [90].

#### V-8-2-Essai d'interprétation:

Il est maintenant généralement reconnu que la dégradation thermique du PVC est initiée par une réaction d'autooxydation conduisant à une série de mécanismes responsables du dégagement de gaz acide chlorhydrique du polymère, puis à la réticulation de ce dernier [2,80,95,102,103].

Une interprétation de ce phénomène (allure de nos courbes) peut être trouvée en se rapportant à la description du mécanisme radicalaire gouvernant la dégradation de nombreux polymères. Nous savons, d'une part, que la propagation de radicaux peroxydes présents dans le PVC conduit à la formation de groupes carbonyles, lesquels peuvent être présents dans un état électronique excité et entraîner l'instabilité du matériau. L'abstraction séquentielle d'HCl contribue à la décoloration du polymère et à la formation de cétones polyconjuguées [2,95]. D'autre part le vieillissement se manifeste par la perte de plastifiant entraînant une augmentation initiale de la rigidité diélectrique du matériau (mis en évidence par la mesure de  $T_g$ ) et la tendance plus ou moins forte qu'à le polymère à se réticuler [80]. L'oxygène et les radicaux libres ont la réputation d'attaquer la formation de sites de réticulation entraînant des modifications dans la structure du matériau pendant la réticulation [2]. Il en résulte la décroissance plus ou moins abrupte de la rigidité diélectrique par conséquent des tensions de rupture et des temps de rupture.

La déshydrochloruration se manifeste déjà aux basses températures (60-70°C) mais avec une cinétique plus lente, aux températures élevées supérieures à 100°C, le phénomène est aberrant, il s'autocatalyse. Initialement, c'est-à-dire en début de réaction de déshydrochloruration, les stabilisants thermiques contenus dans le PVC piègent progressivement l'acide chlorhydrique. Ce processus prend place si la cinétique de la réaction est suffisamment lente. Tant que les stabilisants contenus dans le PVC ne sont pas tous consommés, les propriétés du PVC notamment électriques sont en majorité conservées. Des mesures sur le matériau ont montré que la consommation des stabilisants est faible et est linéaire aux basses températures. Mais dès que l'autocatalyse se déclenche, tous les stabilisants sont consommés et on observe une nette diminution de la résistance d'isolement [103,104].

Il est à noter aussi que l'augmentation de la concentration en plastifiant croît la conductivité ainsi que la mobilité des porteurs [95,105], par conséquent la rigidité diélectrique ainsi que la résistivité volumique diminuent. Donc une perte en plastifiant se manifeste par une meilleure rigidité diélectrique [95,105].

La décroissance de la courbe serait due notamment à des ruptures de chaînes, la réticulation accélérée par la présence d'oxygène qui se fixe sur certains produits de réaction. Il en résulte la formation de peroxydes instables, d'alcool, d'aldéhydes, de cétones,...[102]. Le matériau devient à la limite cassant, friable (c'est le cas du PVC vieilli à la température de 120°C pendant environ 700h). Ce phénomène se répercute plus sur les propriétés mécaniques telle que l'allongement à la rupture. D'après des travaux antérieurs, il a été observé une diminution de l'allongement à la rupture qu'on attribue sans équivoque à la rupture de chaîne et à la perte de plastifiant (ces deux processus seront mis en évidence par la mesure de  $T_g$ ) [80,90,95,104].

Des hypothèses peuvent être émises quant aux mécanismes de claquage. La théorie de claquage d'origine thermique est souvent utilisée pour expliquer la rupture des isolants dans les essais à court terme. Celle-ci suppose qu'il n'y a pas d'accumulation de charges dans le matériau et que le champ interne résultant du champ appliqué, est considérée comme uniforme. Dans le cas du vieillissement, nous supposons que l'étape finale de la rupture diélectrique est un processus d'origine thermique, c'est-à-dire qu'il y a un effet cumulatif et combiné de l'augmentation de la température et de celle de la conductivité électrique du matériau. A champ constant, la conductivité peut être augmentée lorsque la température à l'intérieur du matériau augmente. Ceci peut donc se produire si la conductivité thermique du matériau est très faible (cas des isolants) de telle sorte que l'échange thermique entre l'échantillon et les électrodes ne peut se faire de façon parfaite. Dans ces conditions, à

cause de l'existence des défauts dans le matériau, des échauffements locaux peuvent apparaître et faire augmenter la conductivité électrique qui, à son tour, fait croître la température locale. Ce processus cumulatif continue indéfiniment dans le temps jusqu'au moment où la température locale atteint la température de fusion du matériau. A cet instant, le claquage peut se produire au niveau de ces défauts, soit par augmentation du champ local due à une diminution de l'épaisseur de l'échantillon, soit par une augmentation de la conductivité due au changement d'état du matériau pour provoquer un court-circuit.

L'existence de la charge d'espace peut également expliquer la rupture des matériaux. Lors de l'application d'une différence de potentiel, l'isolant est caractérisé d'abord par le phénomène de polarisation, c'est-à-dire une orientation de dipôles (si la molécule est polaire) et une séparation de charges de signes contraires qui vont migrer vers les électrodes de signes opposés, ce sont les hétérocharges. Si la tension est suffisamment élevée, il peut y avoir transfert de charges à partir des électrodes. Ces charges sont soit déposées à la surface où elles peuvent être piégées, soit injectées dans le volume où elles se comportent de manière analogue aux porteurs d'origine interne. Elles sont du même signe que celui de l'électrode où elles sont émises: on les dénomme homocharges. De ces effets résulte la formation d'une répartition de charge d'espace. A l'échelle microscopique, le signe de la charge d'espace est fixé par les porteurs majoritaires. Le champ électrique est alors modifié localement conformément à l'équation de Poisson:

$$\Delta (\epsilon E) = \rho \quad (V-2)$$

E: champ local;

$\rho$ : densité de la charge d'espace totale au point considéré,

$\epsilon$ : permittivité du diélectrique.

C'est cette charge d'espace, quand son existence est mise en évidence, qui est l'une des causes essentielles du claquage diélectrique dont l'effet dépend de l'amplitude des contraintes appliquées (champ électrique, température, pression). Car elle induit dans les matériaux des champs locaux qui peuvent soit renforcer le champ appliqué ou l'atténuer.

Plusieurs méthodes ont été mises au point pour la mesure directe des distributions de charges ou de champ dans les diélectriques. Parmi ces méthodes, nous pouvons citer la méthode de l'onde de pression induite par laser, la méthode de l'onde de pression électro-acoustique et la méthode de l'onde thermique [4,5,24,28,54].

## V-9-Analyse des résultats de mesure de la température de transition vitreuse:

### V-9-1-Résultats de mesure:

Les mesures de détermination de la température de transition vitreuse par analyse calorimétrique différentielle (DSC) ont été effectuées à l'aide du dispositif de la figure III-6. Les différentes valeurs de cette mesure sont représentées par la figure V-14 sur laquelle sont portées les variations de  $T_g$  en fonction de la durée de vieillissement.

Pour la température de 80°C seules deux mesures ont pu être faites vu l'indisponibilité des capsules renfermant les échantillons.

Il nous paraît important de noter que les plaques vieilles à la température de 120°C présentaient une épaisseur de 2 mm. Car l'épaisseur de l'échantillon influe à la fois sur la diffusion des gaz et sur la diffusion thermique. D'une façon générale, plus un film est mince et poreux, plus il se dégrade facilement et plus nous nous rapprochons des conditions idéales pour étudier un phénomène de dégradation thermique [83,103,106].

A première vue, la température de transition vitreuse  $T_g$  montre une tendance vers une augmentation au début du vieillissement puis tend à diminuer quand la durée du vieillissement croît.

Ces variations sont mises en évidence pour un vieillissement de 100°C car les mesures de  $T_g$  ont pu être effectuées pour toute la période de vieillissement (de 648 à 3660h).

Initialement, c'est-à-dire en début de vieillissement  $T_g$  augmente puis à fur et à mesure que la période de vieillissement croît  $T_g$  se stabilise plus au moins pour chuter brutalement à la fin du vieillissement. Nous observons une très nette amélioration de  $T_g$  pour un temps de vieillissement de 1560h. Ce résultat est prévisible, vu que pour cette valeur du temps de vieillissement, une nette amélioration est acquise par notre matériau concernant la rigidité diélectrique, la tension de rupture ainsi que le temps de rupture.



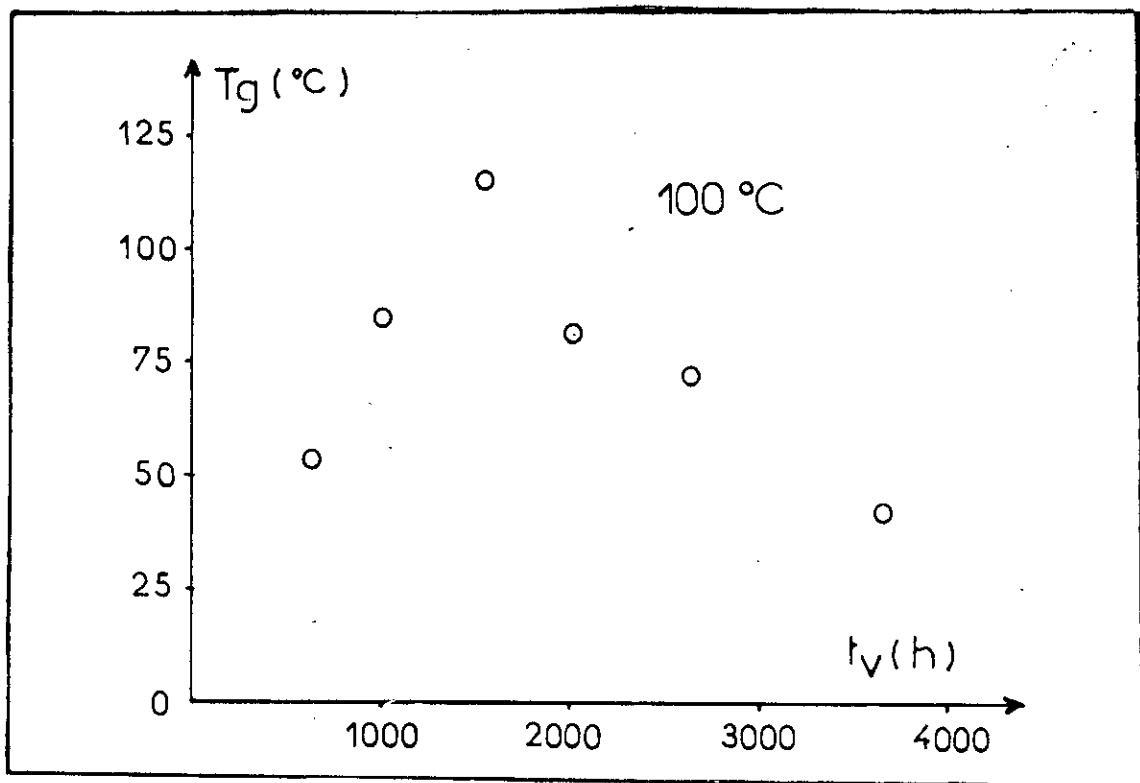


Figure V-14: Variation de la température de transition vitreuse en fonction de la durée de vieillissement pour un vieillissement de 100°C.

#### V-9-2-Essai d'interprétation:

L'efficacité d'un plastifiant veut dire sa capacité de ramener la température de transition vitreuse d'un polymère vers les basses températures [80]. En ajoutant à titre d'exemple 30% de DOP au PVC, la température de transition vitreuse  $T_g$  ou pic diélectrique  $\alpha$ , se déplace de 71°C à -10°C. Le PVC ainsi plastifié est un matériau flexible. Il en est de même en augmentant les charges,  $T_g$  est déplacée aussi vers les basses températures [80]. Il est important de noter aussi que l'histoire thermique du PVC intervient dans la variation de  $T_g$ ;  $T_g$  croît quand la période de stockage croît aussi. Ce processus est attribué au phénomène d'agrégation [80,98,99]. Les transitions diélectriques, notamment  $T_g$ , dépendent de la teneur en plastifiant. Pendant la transformation et l'utilisation, le plastifiant diffuse lentement en dehors du polymère. La conséquence est le déplacement de  $T_g$  vers les hautes températures et parallèlement une augmentation de la rigidité diélectrique du matériau [80,90,91].

Notre matériau auquel a été ajouté une certaine quantité de plastifiants DOP, DINP et DIDP est caractérisé par une température de transition vitreuse mesurée de -7°C. En vieillissant à la température de 100°C pour des périodes croissantes notre matériau présente des valeurs différentes de  $T_g$ . L'augmentation de  $T_g$  est directement attribuée à la

perte de plastifiant. Comme le vieillissement thermique s'est fait en présence d'air, le pic diélectrique  $\alpha$  (ou  $T_g$ ), s'éloigne de sa position initiale et est inattaquée du fait de l'existence du radical  $OH^\cdot$  (mis en évidence par mesure effectuée sur les résidus). Au fur et à mesure que la période de vieillissement augmente, le pic  $\alpha$  est décalé vers des températures plus basses, ce qui correspond à une augmentation de la perte de masse [80,90]. Cette diminution de la température de transition vitreuse est aussi interprétée par l'effet Coke qui correspond à la formation du monoxyde de carbone. Les molécules possèdent dans ce cas un moment dipolaire permanent et la liaison intermoléculaire naît de l'attraction entre dipôles permanents. KEESOM [107] a montré que l'énergie d'interaction entre dipôles permanents est de la forme:

$$E_K \approx - \frac{\mu^4}{L^6 T} \quad (V-3)$$

où:

$\mu$  est le moment électrique des dipôles supposés identiques.

$L$  est la distance entre dipôles.

$T$  est la température absolue.

Ce dernier point exprime que les collisions moléculaires détruisent les associations de molécules d'autant plus aisément que la température est élevée. Ces associations seront donc favorisées par un abaissement de températures [107].

Nous pouvons mettre ainsi en évidence par la mesure de  $T_g$  les ruptures de chaînes quand la température et le temps de vieillissement augmentent.

Une décroissance dans les intensités des pics diélectriques  $\alpha$  (ou  $T_g$ ) est aussi attendue si le processus d'élimination se poursuit [80].

Il reste cependant à interpréter un dernier point à savoir la valeur maximale de  $T_g$  atteinte pour une durée de vieillissement de 1560h. Nous pouvons l'associer à une perte probable maximale de plastifiant et à un processus maximum de réticulation. Puisque de cette perte résulte une augmentation de la valeur de la rigidité diélectrique, qui atteint sa valeur maximale pour cette durée de vieillissement (1560h). La perte de plastifiant affecte aussi les propriétés mécaniques telle que l'allongement à la rupture. Pour un vieillissement de 1500h la valeur de l'allongement à la rupture décroît puis augmente de nouveau pour diminuer ensuite d'une manière spectaculaire [90]. Cette valeur de vieillissement, 1560h. paraît être un "tournant" déterminant dans la variation des propriétés du matériau, de part et d'autre de cette valeur les propriétés du matériau varient. Elle apparaît être "un point de fonctionnement nominal" du PVC vieilli à la température de 100°C.

La transition vitreuse étant liée aux mouvements des segments de chaînes entre deux points consécutifs,  $T_g$  est d'autant plus élevée que les segments sont courts, autrement dit que le degré de réticulation ou l'indice de réseau est élevée [82]. Ce qui vient confirmer notre supposition pour la valeur maximale de  $T_g$ .

### V-9-3-Corrélation tensions et temps de rupture avec $T_g$ :

Les représentations tensions de rupture et temps de rupture en fonction de la température de transition vitreuse sont présentées aux figures. V-15,16.

Les temps de rupture augmentent initialement avec la température de transition vitreuse, puis se stabilisent sensiblement pour augmenter avec l'accroissement de  $T_g$ . Ces variations s'interprètent de la manière suivante: quand le matériau n'est affecté que par la perte de plastifiants et le processus d'élimination, le temps de claquage a tendance à augmenter mais dès qu'il y a rupture de chaîne le temps de rupture diminue considérablement car  $T_g$  diminue aussi. Quand  $T_g$  décroît, cela signifie que l'indice de réticulation [83] est peu élevé, donc la rigidité du matériau ne s'est améliorée que sensiblement. Par conséquent les variations des temps de rupture sont relativement peu importantes. Initialement la morphologie du matériau est améliorée par le processus de réticulation et la perte de plastifiant entraînant par conséquent une meilleure rigidité diélectrique du matériau, mais dès que le processus de vieillissement s'accroît dans le temps, une nette détérioration est perçue dans la morphologie du matériau se manifestant par la diminution de  $T_g$  et des temps de rupture. Le temps nécessaire à la rupture devient de plus en plus faible, mettant ainsi en évidence la dégradation du matériau.

La transition vitreuse est attribuée au mouvement microbrownien des segments de chaîne principale. A  $T_g$  une grande partie de la chaîne du polymère devient mobile. Cette mobilité entraîne un changement dans la structure du matériau. D'où  $T_g$  est désignée par transition structurale [80]. Or la mobilité décroît avec le taux de plastifiant. Quand ce taux est minimale (égal à zéro), la mobilité décroît plus abruptement [105]. Donc la température de transition vitreuse augmente.

Comme nous l'avons déjà souligné,  $T_g$  est d'autant plus élevée que les segments de chaînes sont courts, autrement dit que le degré de réticulation est grand [82]. Quand  $T_g$  augmente le matériau devient plus rigide et la mobilité des porteurs décroît. Par conséquent, la tension de rupture du matériau devient plus élevée pour les valeurs élevées de  $T_g$ .

L'augmentation de  $T_g$  confère au matériau un comportement presque similaire au PVC non plastifié [80].

Le claquage par arborescence est associé aux ruptures de chaînes [108].

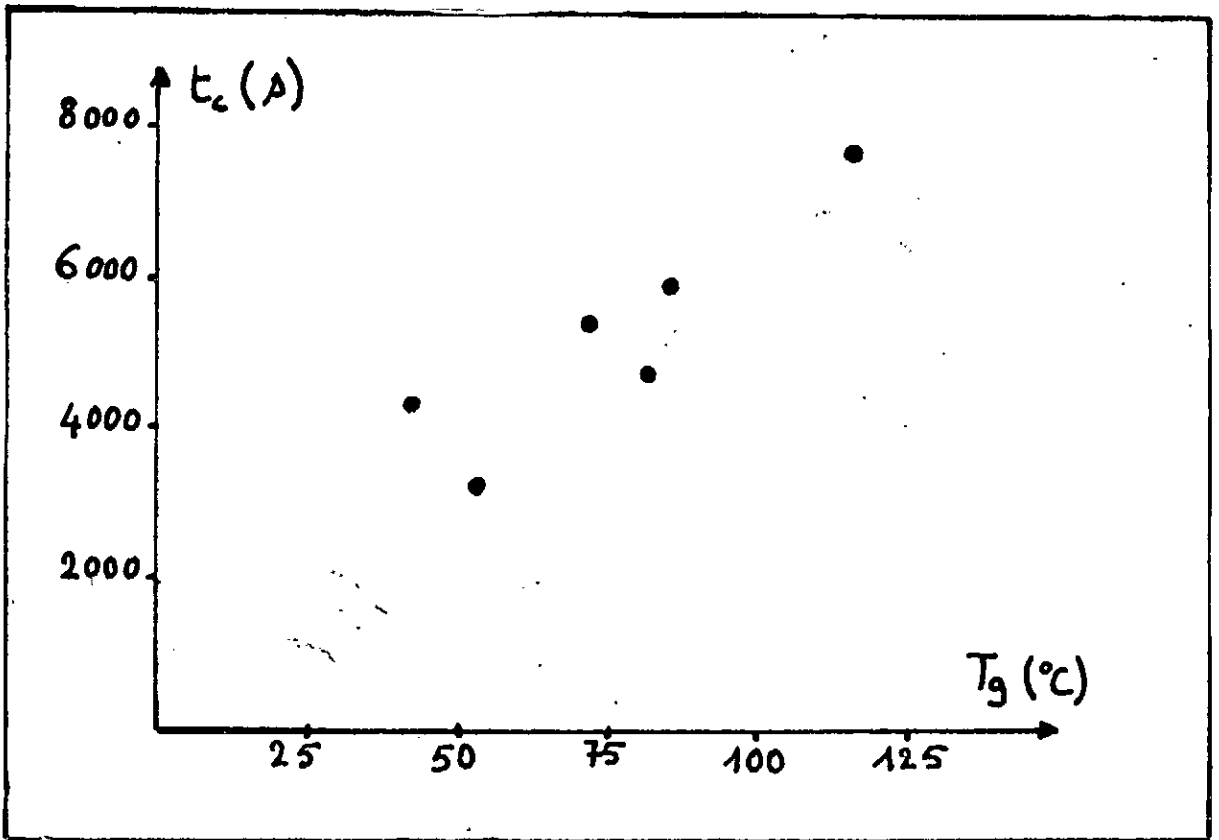


Figure V-15: Corrélation temps de rupture /  $T_g$  pour un vieillissement de  $100^\circ\text{C}$ .

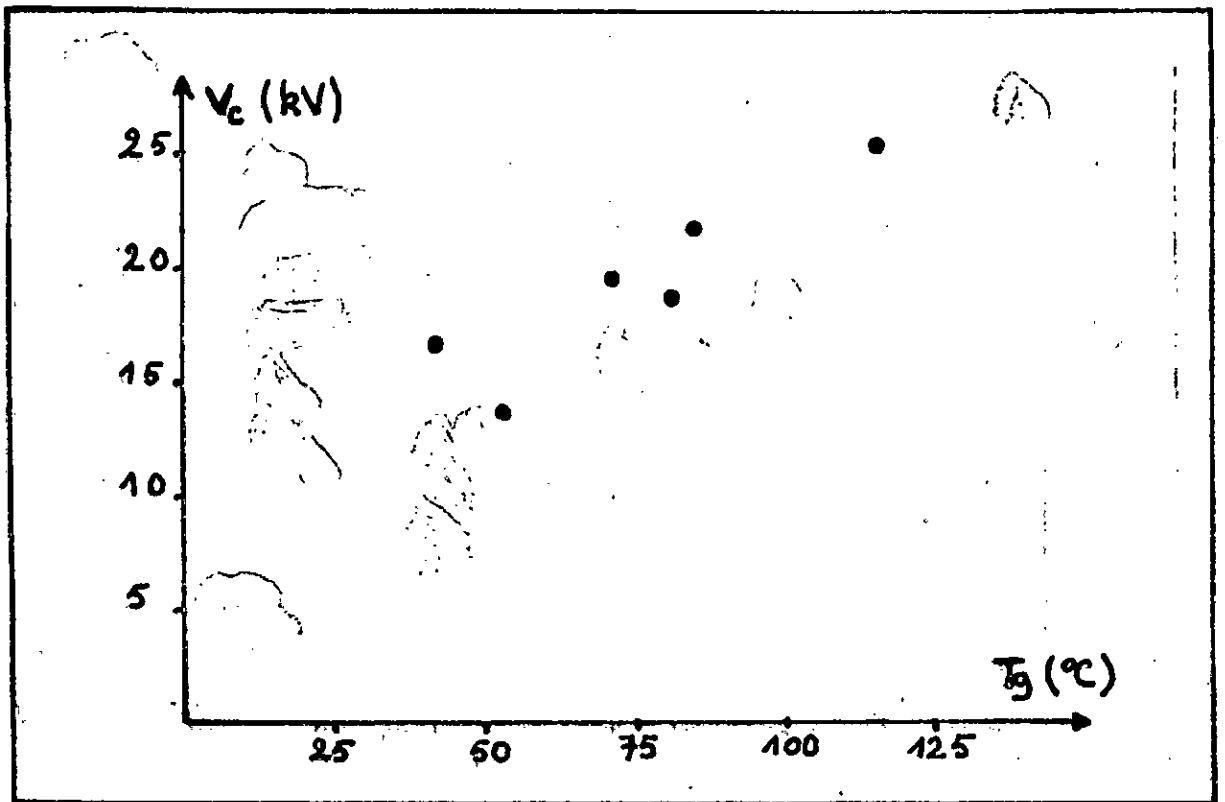


Figure V-16: Corrélation tensions de rupture /  $T_g$  pour un vieillissement de  $100^\circ\text{C}$ .

## V-10-Mesures effectuées sur le résidu de dégradation:

Les résidus lourds de dégradation sont toujours difficiles à étudier. Pour leur attribuer une structure, il faut s'adresser à des techniques d'analyse telles que la spectrographie infra-rouge ou ultra-violet, l'analyse chimique élémentaire, les rayons X, la résonance paramagnétique électronique, etc... [83,85,86,102]. Nous avons opté pour la spectroscopie infra-rouge car d'une part, c'est une méthode disponible au LGE (Toulouse), d'autre part, c'est une technique qui ne nécessite pas beaucoup de préparation ni de temps. Cependant, l'analyse très profonde des spectres infra-rouge, demandent énormément de temps et des connaissances assez approfondie en chimie organique.

Lors de notre analyse des spectres de PVC vieilli aux températures de 80, 100 et 120°C, nous nous contenterons de repérer les changements fondamentaux, évidents ayant eu lieu dans notre matériau.

Les spectres infra-rouge ont été réalisés sur des copeaux prélevés sur chaque plaque de PVC, à l'aide du dispositif de la figure III-8.

L'analyse faite sur 17 spectres (dont un spectre seulement est donné à la figure V-17) montre que des changements se sont opérés dans la structure de la molécule aux différentes températures de vieillissement en fonction des durées de vieillissement. Certains sont très perceptibles (vieillissement à 100 et 120°C), car les pics sont prononcés, tandis que dans d'autres cas (température de vieillissement à 80°C) pour certaines périodes de vieillissement, les pics ne varient que sensiblement.

La bande  $700-600\text{cm}^{-1}$  qui correspond à la vibration Cl ( $\alpha$  correspond à  $690\text{cm}^{-1}$ ) [84,85,86,87,107,109,110] indique une croissance dans les pics diélectriques en fonction du temps de vieillissement. Le phénomène inverse est normalement attendu car le processus de dégradation du type élimination évolue dans le temps. Cette croissance des pics est attribuée au fait que la conjugaison partielle de la chaîne principale entraîne une croissance très rapide de la conductivité. En présence d'une conductivité élevée acquise par le matériau vieilli, il devient difficile de mesurer de faibles modifications de la transition diélectrique [80].

La mise en évidence de la conjugaison partielle de la chaîne principale (réticulation) peut se faire moyennant la dissolution de chaque segment d'éprouvette dans du THF (Tétrahydrofurane) puis séparation des phases constituantes par chromatographie. La quantité du produit réticulé insoluble récupérable est inversement proportionnelle à la fluorescence du segment avant dissolution [2].

La bande  $1600\text{ cm}^{-1}$  correspond au groupe C=C (isolé, conjugué ou aromatique) montre une très nette augmentation en fonction du temps de vieillissement. Elle pourrait être éventuellement attribuée à la conjugaison partielle de la chaîne principale. Sa mise en évidence est possible moyennant la méthode décrite au paragraphe ci-dessus.

L'oxydation se manifeste surtout aux niveaux des groupes alcool, aldéhydes, cétones ou acides dont la bande s'étend de  $1800$  jusqu'à  $1600\text{ cm}^{-1}$ , ainsi que les groupements carbonyles auxquelles correspond un nombre d'onde  $1740\text{ cm}^{-1}$ . Or la détection de ces groupes est rendue difficile par la présence de plastifiant phtalate au lieu du phosphate. Le plastifiant phtalate absorbe très fortement dans cette bande [110]. Nous remarquons sur l'ensemble de nos spectres que cette bande présente une très forte absorption. Pour mettre en évidence l'existence de ces groupes dans notre matériau vieilli, il aurait fallu disposer du spectre du Dioctyle phtalate, le prendre comme référence et procéder à la soustraction entre le spectre de chaque PVC vieilli et le spectre de DOP, par exemple.

De plus, il est impossible de distinguer entre les charges en "argile" et le stabilisant silicate, car tous deux absorbent très fortement à  $1100\text{ cm}^{-1}$  [110].

La région de  $650$  à  $1500\text{ cm}^{-1}$  montre une absorption intense due à un grand nombre, très peu résolu, de bandes superposées des différents ingrédients.

Le pic observé à  $3020\text{ cm}^{-1}$  est attribué au groupe  $\overset{\parallel}{\text{C}}\text{-H}$  correspondant aux vibrations d'allongement des liaisons C-H. L'intensité de ce pic augmente en fonction du temps de vieillissement.

D'autres pics observés à  $2390$ ,  $2780$  et  $2620\text{ cm}^{-1}$  pouvant être attribués éventuellement, aux groupes  $\text{-S}^{\ominus}\text{-OH}$ ,  $\text{SO}_3^{\ominus}\text{H}_3\text{O}^{\oplus}$ ,  $\text{CO}_2^{\ominus}$  ou  $\text{C-C-OH}$ , présentent des intensités variables en fonction de la durée de vieillissement.

Le pic relevé au nombre d'onde  $3400\text{ cm}^{-1}$ , correspond au groupe ou au radical OH, pouvant provenir d'un alcool, un acide ou un phénol, et présente une forte intensité d'absorption en fonction du temps de vieillissement. Ce pic pourrait éventuellement expliquer la croissance initiale de la température de transition vitreuse.

En conclusion, pour définir la structure réelle des résidus de dégradation, il est nécessaire de connaître la formulation complète de notre matériau. Or, en général les fabricants sont tenus de garder leur formule "secrète".

Dans le cas où tous les adjuvants et leur proportion dans la résine de base sont connus, il devient possible de définir les résidus, voire même leur taux respectif après dégradation, en se basant sur les spectres de chaque adjuvant.

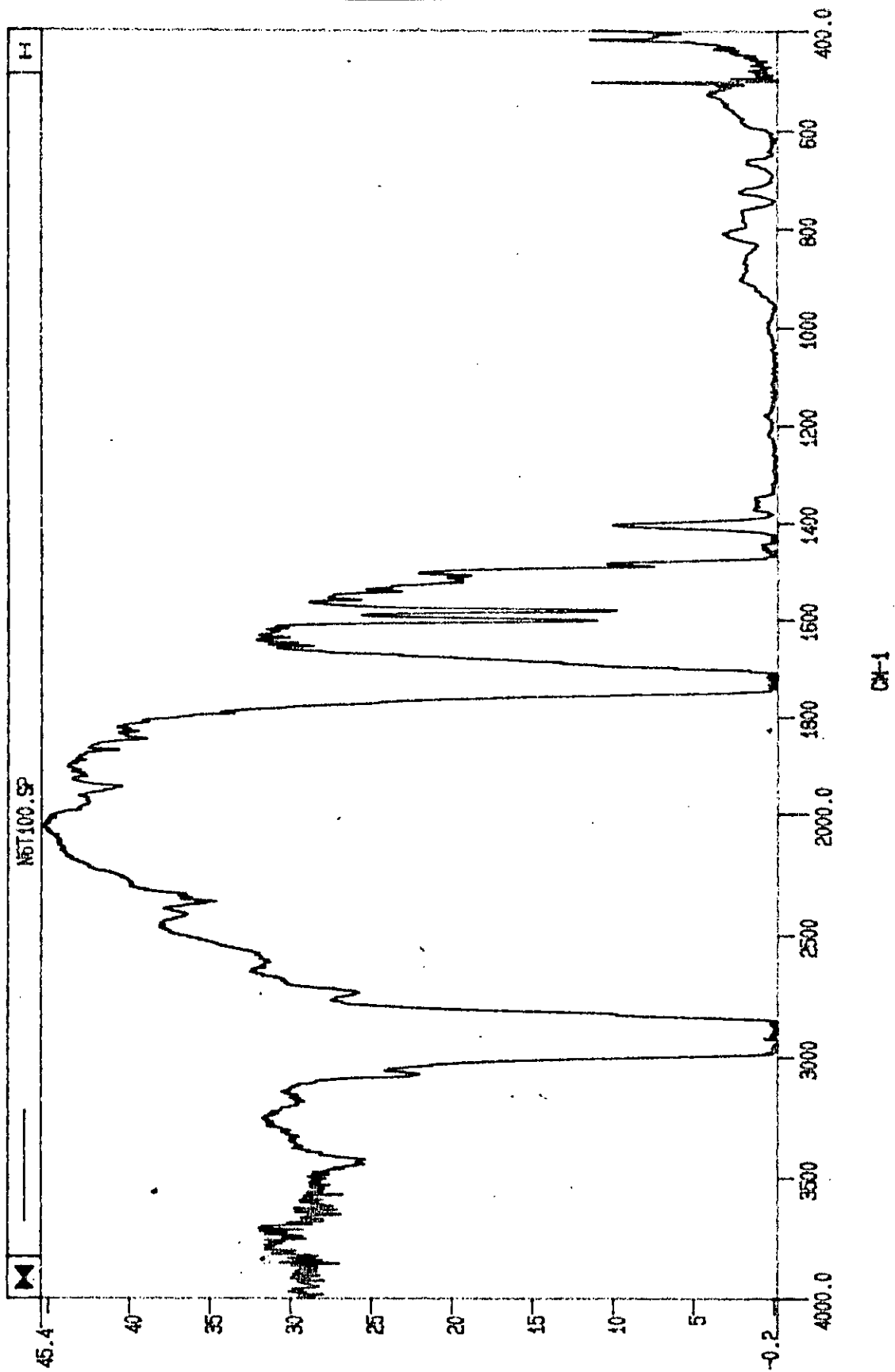
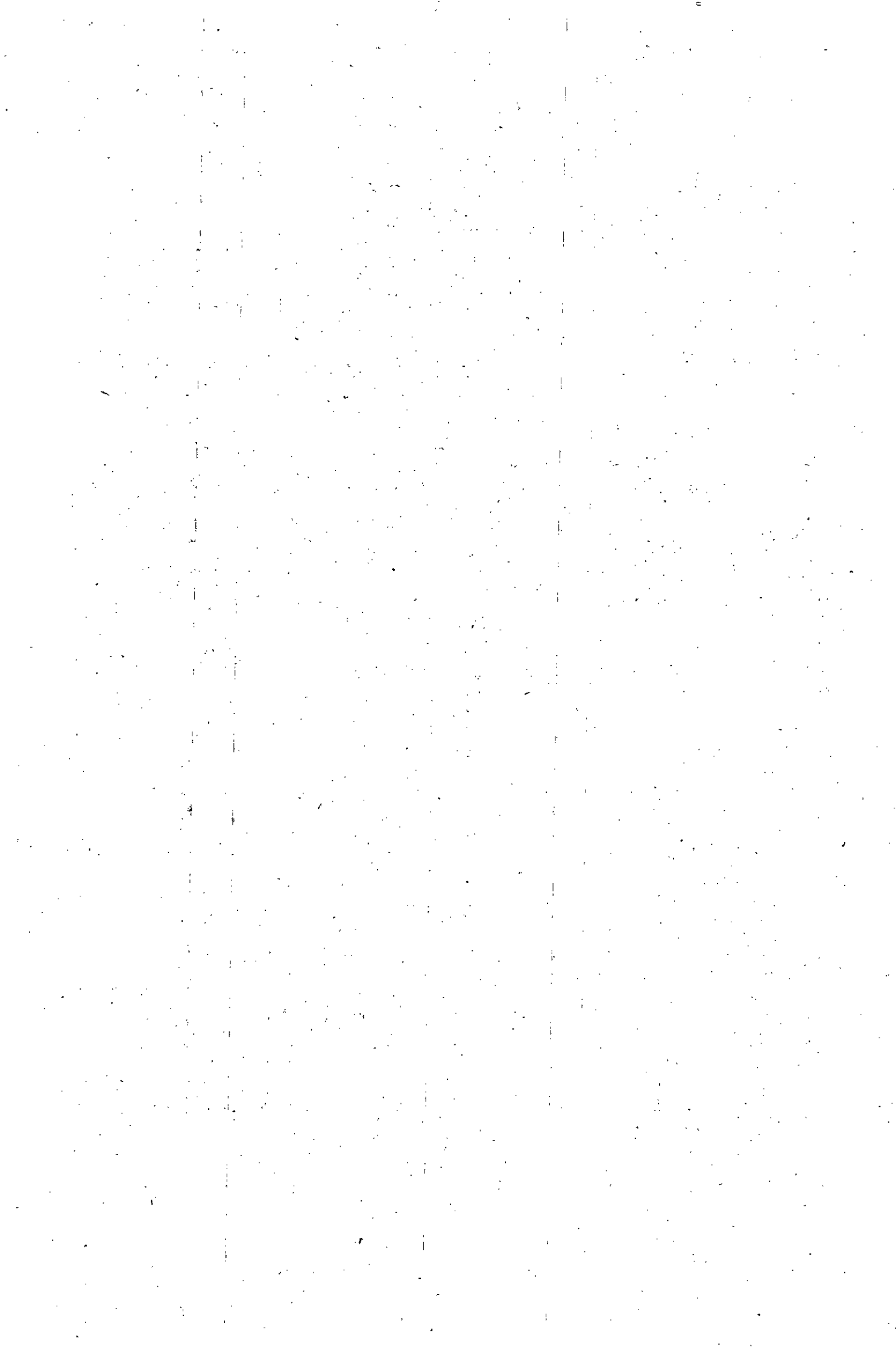


Figure V-17: Spectre infra-rouge d'un échantillon de PVC vieilli à la température de 100°C pendant 3660h.





## CONCLUSION



Le travail que nous présentons dans ce mémoire s'inscrit dans le cadre d'un projet de recherche sur le comportement diélectrique du Polychlorure de Vinyle PVC sous vieillissement thermique utilisé dans l'isolation des câbles haute tension 6/10 kV. Il porte essentiellement sur l'étude des claquages après vieillissement thermique du PVC où des inhomogénéités ont été simulées au laboratoire par des systèmes à aiguille. L'utilisation d'aiguilles convenablement moulées permet de soumettre localement le polymère aux effets d'un champ électrique divergent de niveau connu et reproductible. L'initiation de l'arborescence électrique dans le Polyéthylène est aussi étudiée où des inhomogénéités ont été simulées de la même manière que pour le PVC.

Des essais préliminaires sur l'initiation de l'arborescence électrique dans le Polyéthylène nous ont permis de nous initier à ce phénomène et de mettre au point une méthodologie pour la détermination des tensions ou des temps d'incubation de l'arborescence électrique. Un traitement statistique de nos résultats nous permet de confirmer le bien fondé de la procédure expérimentale adoptée pour la détermination de ces tensions.

A partir des essais de rupture effectués sur le PVC vieilli thermiquement, un traitement statistique de nos résultats est aussi entrepris. Il nous permet d'affirmer que notre matériau vieillit dans le temps ce qui correspond à l'origine à une fatigue nulle et qui s'accroît avec le temps. Pour ce qui est des durées de vie déterminées, nous ne pouvons comparer les résultats trouvés, ni en fonction du temps de vieillissement pour une température donnée, ni en fonction de la température pour un temps de vieillissement donné. La procédure adoptée (palier croissant de  $2 \text{ kV}_{\text{eff}}/15 \text{ min}$ ) ne nous le permet pas. Pour établir un critère de comparaison, il faudra adopter d'autres techniques de mesures, à savoir des essais du type dynamiques ou statiques. Dans ce cas seulement, nous pourrions éventuellement trouver des corrélations telles que durée de vie en fonction de la température de vieillissement, ou bien durée de vie en fonction des temps de vieillissement.

L'application du modèle de Crine basé sur l'énergie de Gibbs et l'existence des submicrocavités de longueur  $\lambda$  a permis d'expliquer qualitativement le sens de variation des droites de vie en fonction du temps de vieillissement. La variation de l'énergie libre  $\Delta G$  en fonction du temps de vieillissement est similaire à celle de la rigidité diélectrique pour une température de vieillissement de  $100^\circ\text{C}$ . L'augmentation, en premier lieu, de  $\Delta G$  est attribuée au processus de réticulation et à la perte de plastifiants. Sa diminution quand le temps de vieillissement devient trop important est associée aux ruptures de chaînes. Pour la température de vieillissement de  $80^\circ\text{C}$  les périodes de vieillissement étant courtes, nous ne pouvons anticiper sur la variation de  $\Delta G$  pour des temps longs. Cependant, pour les valeurs de temps expérimentées  $\Delta G$  montre une

tendance vers une augmentation. La variation de  $\lambda$  en fonction du temps de vieillissement nous permet aussi d'affirmer que le matériau s'est réticulé voire même scindé puisque la valeur de  $\lambda$  décroît en fonction du temps de vieillissement. Cette théorie tient compte d'un champ critique de formation de submicrocavités par la rupture des liaisons intermoléculaires. Ces submicrocavités peuvent s'unir dans le temps pour former des macrocavités et plus tard des cavités qui amorcent des décharges pour aboutir finalement à la rupture.

Les essais de rupture par arborescence ont montré que les tensions de rupture ainsi que les temps de rupture en fonction des temps de vieillissement varient de façon similaire que la rigidité diélectrique du matériau vieilli. Les niveaux des tensions de rupture ainsi que des temps de rupture augmentent car le matériau vieilli pour des temps courts (< 1560h) acquiert une très bonne rigidité du fait de la réticulation et de la perte de plastifiants, puis décroît quand la période de vieillissement devient assez importante (> 1560 jusqu'à 3660h). Cette diminution est attribuée à la détérioration du matériau dans lequel des ruptures de chaînes se produisent.

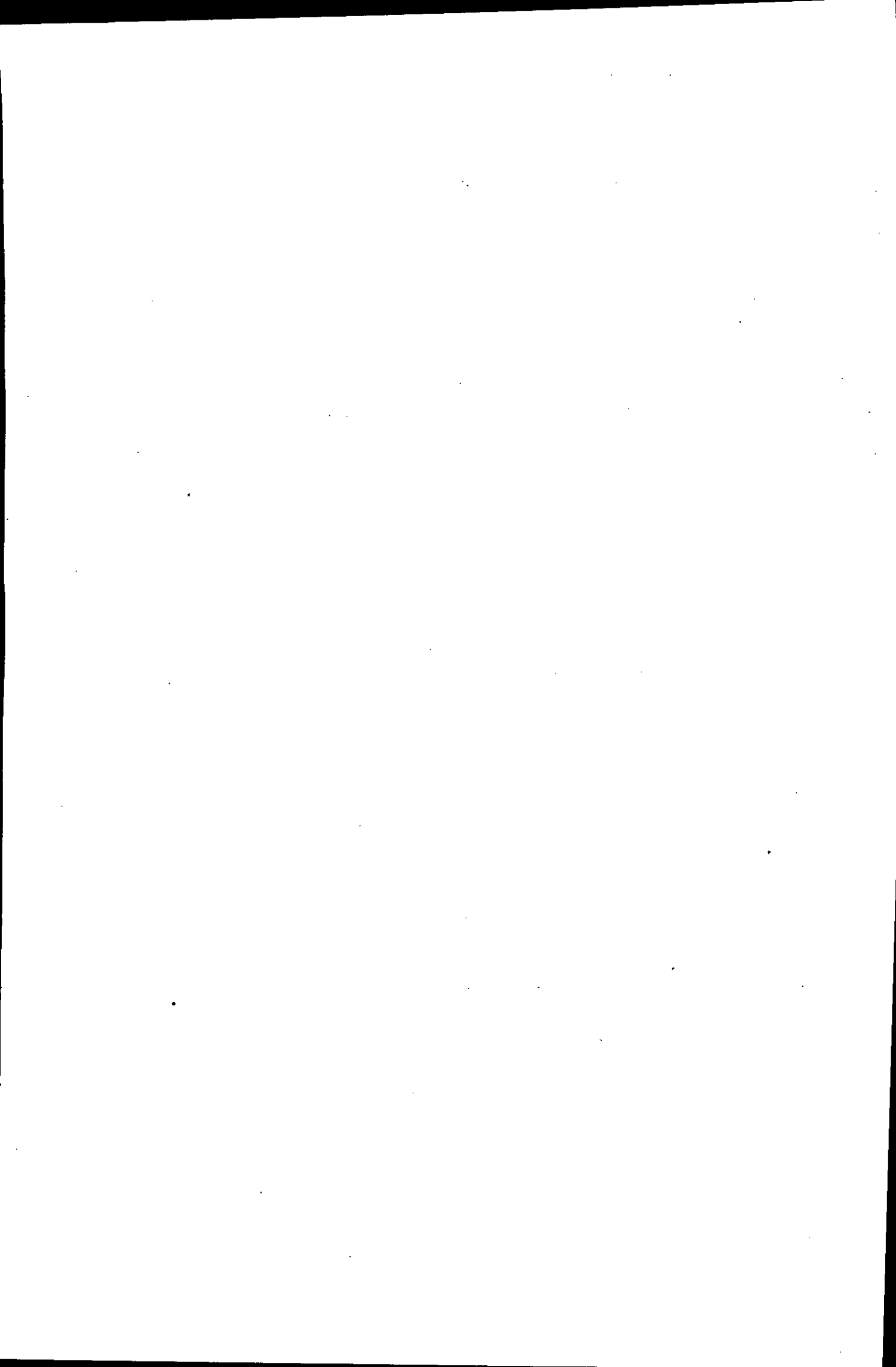
Ces processus de dégradation ont pu être mis en évidence par la mesure de la température de transition vitreuse des éprouvettes de PVC vieilli à la température de 100°C. L'augmentation de la température de transition vitreuse est attribuée sans équivoque aucune à la perte de plastifiants. Nous l'attribuons aussi à la formation de radical  $\text{OH}^\cdot$ . Tandis que sa diminution est associée à l'effet de Coke ou formation du monoxyde de carbone, qui entraîne des ruptures de chaînes.

Il a été vu aussi que les temps et les tensions de rupture croissent en fonction de  $T_g$ . Quand  $T_g$  augmente, par suite de perte de plastifiant et de réticulation, le matériau devient plus rigide. Cette rigidité confère au matériau une plus grande résistance ou "robustesse", améliorant ainsi ces niveaux de rupture. La mobilité des porteurs, elle par contre diminue. Les porteurs ont donc moins de facilité à se mouvoir, augmentant ainsi les temps de rupture. Un comportement similaire à celui du PVC non plastifié est conféré au PVC plastifié vieilli. Mais, dès que les temps de vieillissement deviennent assez importants, essais à long terme, le comportement du matériau change radicalement. Nous observons de très nette diminution dans les valeurs mesurées ou déterminées. Notamment la rigidité diélectrique, la résistance électrique, les valeurs des tensions de rupture et des temps de rupture. Nous pouvons affirmer que la détérioration atteint, à ce stade, sa valeur maximale.

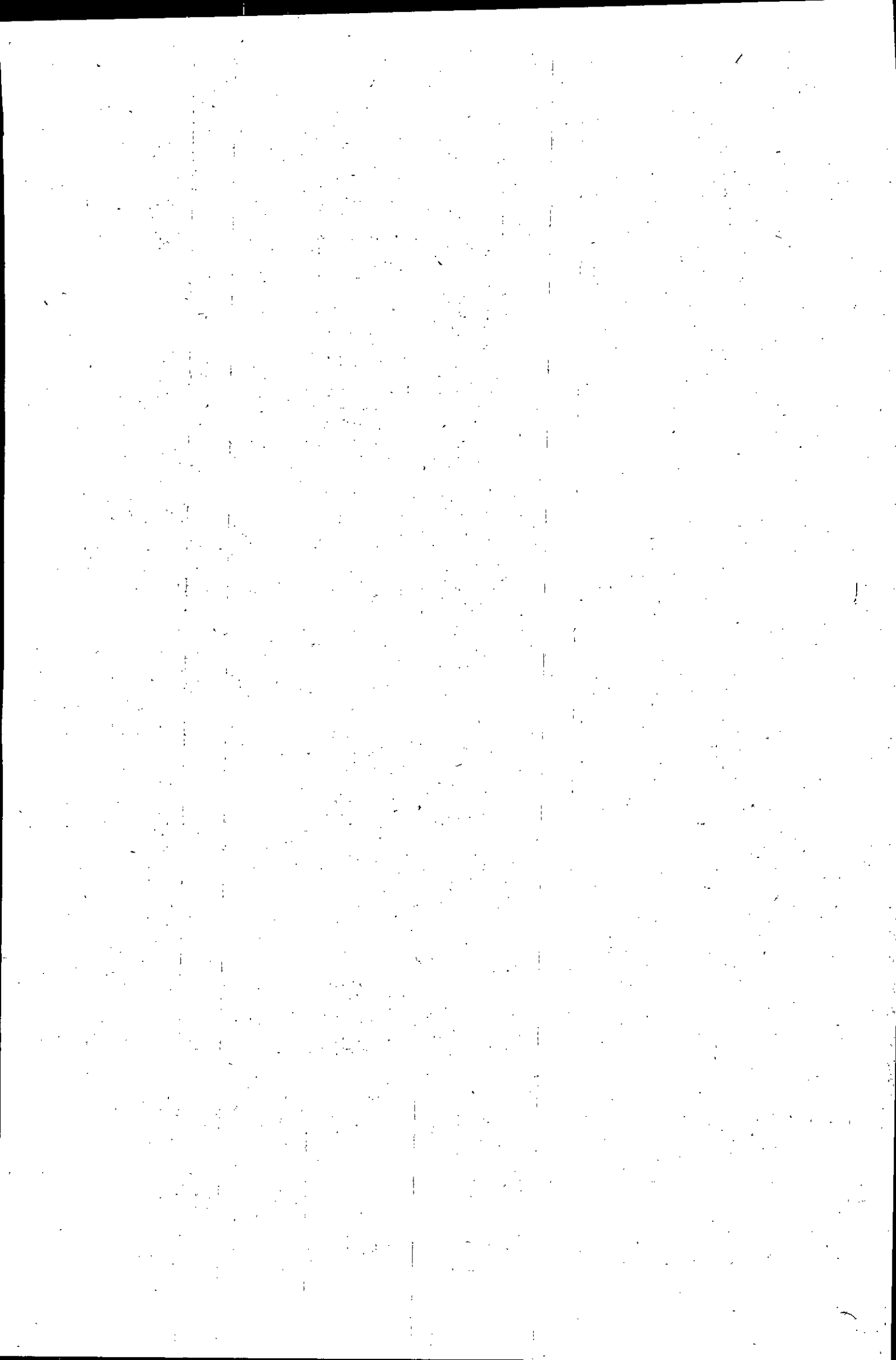
Certains de ces résultats ont pu être confirmés par analyse spectroscopique infra-rouge. Tout comme, nous nous sommes confrontés à des résultats contraires. Par exemple le processus d'élimination

caractérisant la formation d'acide chlorhydrique n'a pu être mise en évidence par spectroscopie infra-rouge. Nous avons au contraire remarqué de forte absorption à la bande  $700-600\text{ cm}^{-1}$ . Ce résultat est interprété par une augmentation de la conductivité continue et alternative du fait de la conjugaison partielle de la chaîne principale, rendant inaccessible la mise en évidence par spectroscopie infra-rouge du processus de déhydrochloruration.

En définitif, il est nécessaire afin de déterminer avec exactitude les mécanismes moléculaires responsables des propriétés diélectriques observées, d'envisager une étude approfondie de la structure et de la morphologie du matériau ainsi que son examen en propriétés mécaniques dynamiques dans un grand domaine de températures et de fréquences. L'exploitation comparative de ces différentes expérimentations devrait permettre de cerner d'une façon rigoureuse les mécanismes moléculaires responsables des phénomènes observés. Certains essais telles que la détermination de la charge d'espace, les mesures des conductivités thermiques, sont nécessaires afin de définir les mécanismes intervenant dans la rupture diélectrique du matériau ainsi vieilli. Il nous paraît judicieux d'insister sur l'histoire thermique du matériau, son stockage, qui influent de beaucoup sur les résultats de mesure. Par conséquent afin de déterminer le véritable rôle du vieillissement thermique il est préférable d'effectuer les essais après chaque durée de vieillissement et non pas de stocker le matériau comme nous l'avons fait. Le vieillissement devrait se faire sous atmosphère inerte, afin de dissocier les effets dus principalement à la température de ceux dus à l'oxydation. Tout comme nous devons essayer de trouver de nouvelles méthodes de moulage afin d'écarter l'existence de défauts du aux imperfections des méthodes de moulage.



**ANNEXE**





## I-Présentation de la loi de Weibull:

Pour un volume donné à contrainte de tension constante le modèle de Weibull à trois paramètres est défini par [58,59]:

$$F(t) = 1 - \exp\left[-\left(\frac{t-\gamma}{t_0}\right)^\beta\right] \quad (\text{A-1})$$

où:

$t$  est la variable aléatoire, représentant le temps de claquage à tension constante.

$t_0$  est le paramètre d'échelle

$\beta$  est le paramètre de forme

$\gamma$  est le paramètre de localisation

$F(t)$  est la fonction de probabilité cumulée de claquage ou défaillance, elle représente la proportion d'échantillon qui claqueront au bout d'un temps inférieur ou égal à  $t$ .

La fonction de répartition  $F(t)$  est nulle pour  $0 < t \leq \gamma$ . Elle augmente lorsque  $t$  croît. Quand le temps  $t$  tend vers l'infini la probabilité de claquage approche la certitude  $F(\infty)=1$ .

Le paramètre de localisation ( $\gamma$ ) représente une valeur en dessous de laquelle la probabilité de claquage est nulle. En général le paramètre de localisation est pris égal à zéro (on dit que le phénomène à l'étude présente un seuil égal à zéro), la loi de Weibull à deux paramètres s'écrit alors:

$$F(t) = 1 - \exp\left[-\left(\frac{t}{t_0}\right)^\beta\right] \quad (\text{A-2})$$

Le paramètre d'échelle ( $t_0$ ) représente le temps requis pour que 63,2% des échantillons claquent. Il est analogue à la moyenne de distribution normale à argument logarithmique. Les unités de  $t_0$  sont celles du temps.

Le paramètre de forme ( $\beta$ ) est une mesure de la dispersion du logarithme des temps de claquage. Le paramètre de forme, sans dimension, est analogue à  $1/\sigma_{\log t}$  où  $\sigma_{\log t}$  est l'écart-type de la distribution normale à argument logarithmique.

Si le paramètre de forme est inférieur à 1 la probabilité de claquage diminue avec le temps, ceci correspond à une "mortalité infantile" des échantillons qu'on dénomme "défaut de jeunesse" des échantillons.

Si  $\beta=1$  la loi de Weibull est équivalente à une loi exponentielle et la probabilité de claquage est indépendante du temps (d'application de la tension).

Si  $\beta$  est supérieur à 1 la probabilité de claquage augmente avec le temps ce qui correspond à un vieillissement normal c'est-à-dire à une fatigue initialement nulle et qui s'accroît avec le temps.

## II-Estimation des paramètres de Weibull:

Il n'existe pas de méthode précise d'estimation des paramètres  $t_0$  et  $\beta$  de la distribution de Weibull. Cependant deux méthodes d'estimation sont utilisées:

### II-1-Estimation graphique:

Pour utiliser cette méthode, il faut d'abord ranger les temps de claquage par ordre croissant. La probabilité  $F(t_i)=P_i$  associée à la  $i^{\text{ème}}$  plus petite valeur du temps est donnée par [54]:

-Lorsque  $n$  est suffisamment grand:

$$P_i = 100 \cdot \frac{i}{n+1} \text{ en \% (rangs moyens)} \quad (\text{A-3})$$

-Lorsque  $n$  est faible de l'ordre de la dizaine ou moins:

$$P_i = 100 \cdot \left[ \frac{0,69}{n} + (i-1) \left( \frac{1}{n-1} - \frac{1,38}{n(n-1)} \right) \right] \text{ en \%} \quad (\text{A-4})$$

(rangs medians)

où  $n$  est le nombre total d'échantillons testés.

La méthode graphique consiste à porter sur une échelle log-log le logarithme népérien de  $1/(1-F(t))$  en fonction du temps  $t$ . A partir de l'ensemble des points  $(t, 1/(1-F(t)))$ , on ajuste une droite appelé droite de Weibull soit à "l'oeil" soit par la méthode des moindres carrés. Puisque la variable aléatoire est sur l'axe horizontal, les déviations horizontales des données de la droite de Weibull doivent être minimisées.

L'estimation  $t_0(m)$ , où  $t_0(m)$  est la meilleure estimation de  $t_0$ , du paramètre d'échelle est alors donnée par le temps correspondant à  $F(t)=63,2\%$ .

L'estimation  $\beta(m)$ , où  $\beta(m)$  est la meilleure estimation de  $\beta$ , est donnée par:

$$\beta(m) = \frac{\log(\ln X_1) - \log(\ln X_2)}{\log\left(\frac{t_1}{t_2}\right)} \quad (\text{A-5})$$

où:

$$X_1 = 1/(1-F(t_1)) \quad \text{et} \quad X_2 = 1/(1-F(t_2))$$

$(t_1, F(t_1))$  et  $(t_2, F(t_2))$  correspondent à deux points de la droite de Weibull.

Remarque:

Il existe dans le commerce du papier à échelles fonctionnelles dits d'Allan-Plait. La représentation graphique sur celui-ci revient à ajuster sur une droite l'ensemble des points  $(t_i, F(t_i))$ . (figure A-1).

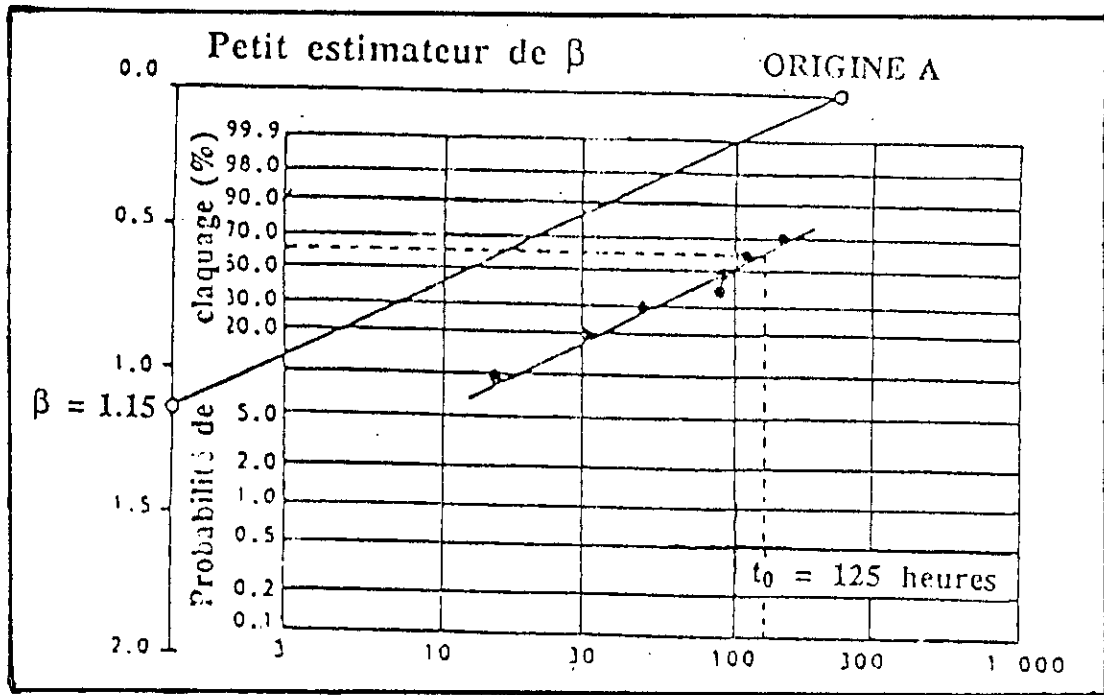


Figure A-1: Représentation de données de vieillissement de résine d'époxy sur papier de probabilité de Weibull [54].

L'estimation  $t_0(m)$  est donnée comme précédemment.

L'estimation  $\beta(m)$  consiste à mener à partir du point "origine A" une parallèle à la droite ajustée. L'intersection de cette parallèle avec l'axe appelé "petit estimateur de bêta" donnera la meilleure estimation de  $\beta(m)$ .

Pour conclure, la méthode graphique est une méthode simple permettant de vérifier rapidement si la distribution de Weibull est bien appropriée; Ce qui a fait d'elle la méthode la plus utilisée. Par contre, l'estimation des paramètres de cette loi par cette méthode n'est pas satisfaisante, car d'une part, il y a impossibilité de détermination d'un intervalle de confiance des paramètres ainsi estimés, d'autre part, si la

droite de Weibull a été ajustée à l'oeil, l'estimation des paramètres devient subjective (elle dépendra de l'opérateur).

Si la droite de Weibull a été ajustée par la méthode des moindres carrés, la détermination de l'intervalle de confiance sur cette méthode ne tient pas compte du caractère double exponentiel de la distribution de Weibull.

Notons aussi que la méthode graphique n'est pas valable pour des données tronquées.

## II-2-Estimation des paramètres par la méthode du maximum de vraisemblance:

La "méthode du maximum de vraisemblance" due à Fisher, est une technique analytique utilisée pour l'estimation du ou des paramètres d'une distribution de probabilité [54]:

### a-Principe de la méthode:

Soient  $f_c(x)$  la fonction de densité de probabilité de la distribution de la variable aléatoire  $x$  dépendant du paramètre  $c$  et  $x_1, x_2, \dots, x_n$  les valeurs de la variable aléatoire  $x$  (les  $x_i$  variables sont indépendantes), on définit la fonction de vraisemblance par:

$$L = \prod_{i=1}^n f_c(x_i) \quad (A-6)$$

elle correspond à la probabilité d'avoir toutes les valeurs  $x_1, x_2, \dots, x_n$  observées dans le même échantillon au sens statistique du terme par application de la règle du produit.

Le principe d'estimation du paramètre "c" par cette méthode consiste à chercher la valeur de "c" rendant maximum la fonction de vraisemblance tel que:

$$dL/dc = 0$$

En pratique on utilise:

$$d \log L / dc = 0, \quad \text{avec } d^2 \log L / dc^2 < 0;$$

L'estimateur s'écrit alors:

$$\hat{c} = g(x_1, x_2, \dots, x_n)$$

### b-Application à la loi de Weibull:

L'application de la méthode du maximum de vraisemblance pour l'estimation des paramètres  $t_0$  et  $\beta$  de la loi de Weibull à deux paramètres se ramène à la résolution du système suivant:

$$\frac{t_0}{\beta} + \sum_{i=1}^n \log t_i - \lambda \sum_{i=1}^n (t_i^\beta \log t_i) = 0 \quad (\text{A-7})$$

$$\frac{n}{\lambda} - \sum_{i=1}^n t_i^\beta = 0 ; \quad \text{avec} \quad \lambda = \left(\frac{1}{t_0}\right)^\beta$$

qui est un système de 2 équations non linéaires à deux inconnues  $\beta$  et  $\lambda$ . On peut le résoudre, par exemple, par approximations successives.

Soient les équations finales qui permettent de déterminer  $t_0(m)$  et  $\beta(m)$ :

$$f(\beta) = \frac{A_2}{A_1} - \frac{1}{\beta} - C = 0 \quad (\text{A-8})$$

$$t_0(m) = \left(\frac{A_1}{r}\right)^{\frac{1}{\beta(m)}} \quad (\text{A-9})$$

avec:

$$A_k = \sum_{i=1}^r t_i^\beta (\ln t_i)^{(k-1)} + (n-r) t_s^\beta (\ln t_s)^{(k-1)}$$

pour  $k=1,2,3$ . ( $A_3$  est utilisé pour la résolution par itération).  
et:

$$C = \frac{1}{r} \sum_{i=1}^r \ln t_i$$

$t_i$  est le temps de claquage du  $i^{\text{eme}}$  échantillon  
 $t_s$  est le temps auquel a été arrêté l'expérience  
 $n$  correspond au nombre total des échantillons  
 $r$  est le nombre d'échantillons qui ont claqué.

La résolution de l'équation (A-8) permettant la détermination de  $\beta(m)$  se fait par itérations. La méthode choisie est celle de Newton-Raphson.

$$\beta_{j+1} = \beta_j - \frac{f(\beta_j)}{f'(\beta_j)} \quad (\text{A-10})$$

avec:

$$f'(\beta_j) = \frac{A_2}{A_1} - \left(\frac{A_2}{A_1}\right)^2 + \frac{1}{\beta^2} \quad (\text{A-11})$$

et  $j$  est le nombre d'itérations.

Cette méthode nécessite au préalable une estimation de  $\beta$  par la méthode graphique.

Les estimations des paramètres  $t_0$  et  $\beta$  selon cette méthode sont en général réalisées sur micro-ordinateur.

Une fois ces paramètres déterminés, on porte sur un graphe de Weibull les données et on trace la meilleure droite déterminée à partir de  $t_0(m)$  et  $\beta(m)$ .

**En conclusion:**

-Les estimations de  $t_0$  et  $\beta$  par cette méthode sont nettement meilleures que celles données par la méthode graphique.

-La méthode du maximum de vraisemblance peut être appliquée pour n'importe quel nombre ( $n$ ) d'échantillons et n'importe quel taux de tronquage ( $r$ ) (des données tronquées se présentent lorsqu'un test comprenant  $N$  échantillons est arrêté avant le claquage de tous les échantillons).

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] C.STEVENS, A.G.DAY, B.FALLOU, "Méthodes complémentaires aux essais d'endurance thermique des matériaux isolants", CIGRE, Groupe 15-05, pp.1-8, 1-9 Sept. 1982.
- [2] C.H.STAPPER, "Mesure de la stabilité thermique du PVC contrôle en laboratoire et en atelier", Caoutchoucs et Plastiques n°623, pp.61-63, Août/Sept. 1982.
- [3] R.M.EICHHORN, "Treeing in solid extruded electrical insulation" IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.EI-12, pp.2-18, 1977.
- [4] C.LAURENT, "Contribution à l'étude des mécanismes de la rupture diélectrique à long terme des polymères", Thèse de doctorat d'Etat UPS Toulouse 1984.
- [5] C.LAURENT, "Etude de la propagation des arborescences électriques dans le Polyéthylène par voies optique et électriques", Thèse de docteur Ingénieur UPS Toulouse 1979.
- [6] R.M.EICHHORN, in "Engineering Dielectrics", Vol II A, Bartnikas/Eichhorn eds. ASTM. Technical Publications 783, 1983.
- [7] J.W.BILLING, D.J.GROVES, "Treeing in mechanically strained h.v.-cable polymers using conducting polymer electrodes" Proc. IEE, vol.121, n°11, pp.1451-1456, Nov.1974.
- [8] Gu.WENYANG, "Sur la rupture diélectrique de polymères liée aux phénomènes d'arborescence", Thèse de docteur Ingénieur UPS Toulouse 1986.
- [9] N.I.SINISUKA, "Caractérisation spectroscopique de l'atmosphère gazeuse à l'intérieur des arborescences électriques", Thèse de docteur Ingénieur UPS Toulouse 1980.
- [10] Y.SAITO, M.FUKUZAWA, H.NAKAMURA, "On the mechanism of tree initiation". IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.EI-12, n°1, pp.31-34, 1977.
- [11] M.NAWATA, H.KAWAMURA, M.IEDA, "Voltage and temperature dependances of treeing breakdown in organics insulators", Electr. Engineering in Japan, vol.91, n°4, pp.109-115, 1971.

- [12] F.NOTO, N.YOSHIMURA, "Initiation and growth of tree in polymeric dielectric materials", CEIDP, pp.274-281, 1973.
- [13] R.FOURNIE, "Les isolants en électrotechnique", Edi. Eyrolles, 1986.
- [14] G.BAHDER, T.W.DAKIN, J.H.LAWSON, "Analyse du claquage par arborescences" CIGRE vol.1, 15-05, pp.1-16, 1974.
- [15] Y.SHIBUYA, J.ZOLEDZIOWSKI, J.M.CALDERWOOD, "Void formation and electrical breakdown in epoxy resin" IEEE Trans. on Pas, vol.Pas 96, n°1, pp.198-207, 1977.
- [16] K.G.BURGER, "Investigation on tree initiation by analysis of partial discharge phase-angle" Proceeding of First International Conference on Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics, pp.370-374, July 4-8, Toulouse 1983.
- [17] Y.KAGAWA, S.YAMAZAKI, "Acoustic emission associated with tree growth in polymeric materials", IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.EI-17, n°4, pp.314-318, 1982.
- [18] H.FUJITA, T.NAKANISHI, "Acoustic emission distributions and types of electrical trees in polyester resin", IEEE Trans. on Elect. Insul. vol.EI-18, n°5, pp.520-527, 1983.
- [19] T.TANAKA, C.W.REED, J.C.DEVINS, A.GREENWOOD, "Effects of gaz phase on tree initiation in polyethylene" CEIDP, pp.333-341, 1978.
- [20] M.R.WERTHEIMER, J.ANDRIOJOHANINARIVO, A.YELON, R.J.DENSLEY, "Systematic study of partial discharge inception voltage in polyethylene" CEIDP, pp.278-283, 1981.
- [21] F.NOTO, N.YOSHIMURA, "Voltage and frequency dependence of tree growth in polyethylene", 1974 Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, pp.207-217, 1975.
- [22] E.HALLEN, "Electromagnetic Theory", Champman et Hall, Londres, pp.35-73, 1962.
- [23] F.NOTO, N.YOSHIMURA, T.OHTA, "Tree initiation in polyethylene by application of DC and impulse voltage" IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.EI-12, n°1, pp.26-30, 1977.
- [24] R.M.EICHHORN, "Treeing in solid extruded electrical insulation" IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.EI-12, n°1, pp.2-18, 1976.



- [25] G.BACQUET, J.DIB, C.Y.WU, "ESR study of free radicals in electrical trees in polyethylene" IEEE Trans.on Elect.Insul.vol.EI-13, n<sup>o</sup>3, pp.157-163, 1978.
- [26] Y.SHIBUYA, Thesis for the degree of Doctor of Philosophy, University of Salsford, 1976.
- [27] K.NAKANISHI, S.HIRABAYASHI, Y.JNUISHI, "Phenomena and mechanism of tree inception in epoxy resins" IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.EI-14, n<sup>o</sup>6, pp.306-314, 1979.
- [28] M.STOICA, F.TANASESCO, G.GIURGIU, A.IFRIM, "Le phénomène d'arborescence dans les matériaux diélectriques synthétiques destinés à l'isolation des câbles de force" CIGRE groupe 15-11, pp.1-12, session d'Aout 1978.
- [29] R.J.DENSLEY, "An investigation in to the growth of electrical trees in XLPE cable insulation" IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.EI-14, n<sup>o</sup>3, pp.148-158, 1979.
- [30] C.LAURENT, C.MAYOUX, "Analysis of the propagation of electrical treeing using optical and electrical methods" IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.EI-15, n<sup>o</sup>1, pp.33-42, Feb. 1980.
- [31] N.YOSHIMURA, N.NISHIDA, F.MOTO, S.A.A.HAMMAM "Effect of microvoids on V.t characteristics and tree growth in cross linked polyethylene" CEIDP, pp.342-350, 1978.
- [32] A.B.BORISHADE, D.W.AUCKLAND, "The development of electrical discharges in simulated tree channels" IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.EI-12, n<sup>o</sup>5, pp.348-354, Oct.1977
- [33] E.J.McMAHON, "A tutorial on treeing" IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.EI-13, pp.277-288, 1979.
- [34] S.GRZYBOWSKI, R.DOBROSZEWSKI, "Influence of partial discharges on the development of electrical treeing in polyethylene insulated cables"
- [35] J.S.RZAD, J.C.DEVINS, "Effects of additives on breakdown in polyethylene" CEIDP, pp.352-357, 1978.
- [36] D.WILKENS, "A study of treeing in medium voltage power cables", IEEE Trans. Pas 93, n<sup>o</sup>4, pp.1201-1207, Sept. 1974

- [37] M.KOSAKI, N.SHIMIZU, K.HORTI, "Treeing of polyethylene at 77 K", IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.EI-12, n<sup>o</sup>1, pp.40-45, Feb. 1977.
- [38] Technical Report "On water treeing in organic insulating materials", IEE Japan Technical Report n<sup>o</sup>111, pp.1-30, Aug. 1974.
- [39] E.MOREAU, C.MAYOUX, "Etudes des arborescences d'eau", Rapport, LGET, 1990.
- [40] E.H.REYNOLDS, R.M BLACK, R.M.HINDE, "The disclosure of treeing in polymeric insulation", 1972 Annual Report CEIDP, pp.125-132, 1973.
- [41] G.BAHDER, G.S.EAGER, R.G.LUHAC, "Influence of electrochemical trees on the electrical properties of extruded polymeric insulation" CEIDP, pp.289-310, 1974.
- [42] W.VAHLSTROM, "Investigation of insulation deterioration in 15 kV and 22 kV polyethylene cables removed from service", IEEE Trans. On PAS, n<sup>o</sup>91, pp.1023-1035, 1972.
- [43] J.H.LAWSON, W.VAHLSTROM, "Investigation of insulation deterioration in 15 kV and 22 kV polyethylene cables removed from service, Pt.II" IEEE Trans. On PAS, vol.92, pp.824-835, 1973.
- [44] C.KATZ, B.S.BERNSTEIN, "Electrochemical treeing at contaminants in polyethylene and cross-linked polyethylene insulation", Ann. Rep. CEIDP, pp.307-316, 1973.
- [45] S.ISSHIKI, M.YAMAMOTO, S.CHABATA, T.MIZOGUICHI, M.ONO, "Water trees in cross-linked polyethylene power cables" IEEE Trans. On PAS, n<sup>o</sup>93, pp.1419-1429, Oct. 1974.
- [46] T.TABATA, T.FUKADA, Z.JWATA, "Investigation of water effects on degradation of cross-linked polyethylene insulated conductors", Paper 71, TP 545 PWR, pp.1361-1370, IEEE Juin 1971.
- [47] T.MIYASHITA, "Deterioration of water-immersed polyethylene-coated wire by treeing", IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.EI-6, n<sup>o</sup>3, pp.129-135, June 1977.
- [48] E.A.FRANKE, J.STAUFFER, E.CZEKAJ, "Water trees growth in polyethylene under DC voltage stress" IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.EI-12, n<sup>o</sup>3, pp.218-223, June 1977.

- [49] J.Y.KOO, J.C.FILPPINI, "Effect of physico-chemical factors on the propagation of water trees in polyethylene", Proceeding 1<sup>st</sup>. International Conference on Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics, Toulouse, 4-8. July, pp.255-260, 1983.
- [50] E.MOREAU, A.BOUDET, C.MAYOUX, C.LAURENT, PH.MONTAGNE, J.BERDELA, "Mise en évidence des chemins continus dans la structure des arborescences", JICABLE 1991, Third Intern. Conf. on polymer insulated power cables, pp.214-219, VERSAILLES, Juin 1991.
- [51] P.CYGAN, J.R.LAGHARI, "Models for insulation aging under electrical and thermal multistress", IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.25, n<sup>o</sup>5, pp.923-934, Oct. 1990.
- [52] S.ZOLEDZIOWSKI, A.SIEROTA, "Physical and statistical aspects of breakdown characteristics of solid dielectrics", Fourth International Conference on Conduction Materials, Measurements and Applications, pp.84-87, 10-13 Sept. 1984.
- [53] C.LAURENT, "La rupture dans les diélectriques", Revue Générale de l'Electricité", n<sup>o</sup>10, pp.745-755, Oct. 1985.
- [54] F.BENLIZIDIA-LALAM, "Etude des phénomènes de rupture à long terme des isolants de câbles d'énergie sous pression", thèse de Doctorat de l'UPS. Toulouse, 1992.
- [55] J.M.ODDIN, Y.REROLLE, H.THEVENON, "Théorie statistique du claquage", Revue Générale de l'Electricité, tome 77, n<sup>o</sup>4, pp.430-436, Avril 1968.
- [56] R.M.HILL, L.A.DISSADO, "Fluctuations as a basis for the Weibull statistics of electric breakdown", Proceeding of 1<sup>st</sup> International Conference on Conduction and Breakdown in Solid Dielectric, pp.286-290, Toulouse July 4-8 1983.
- [57] J.C.FOTHERGILL, R.M.HILL, L.A.DISSADO, S.V.WOLFE, "Applications and implications of Weibull statistics in dielectrics", Proceeding of 1<sup>st</sup> International Conference on Conduction in Solid Dielectric, pp.291-295, Toulouse July 4-8, 1983.
- [58] H.HIROSE, "A method to estimate the lifetime of solid electric insulation", IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.Ei-22 n<sup>o</sup>6, pp.745-753, Dec. 1987.
- [59] P.CYGAN, B.KRISHNAKUMAR, J.R.LAGHARI, "Lifetimes of Polypropylene films under combined high electric field and thermal stress", IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.24, n<sup>o</sup>4, pp.619-625, Aug. 1988.

- [60] T.S.RAMU, "On the estimation of life of power apparatus insulation under combined electrical and thermal stress", IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.EI-20, n01, pp.70-78, Feb. 1985.
- [61] L.SIMONI, "General equation of the decline in the electric strength for combined thermal and electrical stress", IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.EI-18, n01, pp.45-52, Feb. 1984.
- [62] G.C.MONTANARI, M.CACCIARI, "A probabilistic life model for insulating materials showing electrical threshold", IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.24, n01, pp.127-134, Feb. 1989.
- [63] G.C.STONE, G.C.MONTANARI, M.CACCIARI, Discussion "a probabilistic life model for insulating materials showing electrical thresholds", IEEE. Trans. on Elect. Insul., vol.24, n01, pp.135-137, Feb. 1989.
- [64] J.P.CRINE, "On the use of rate theory to understand the aging dielectrics", Conference Record, International Conference on Properties and Applications of Dielectric Materials, pp.214-217, 1985.
- [65] S. GLASSTONE, K.J.LAIDLER, H.EYRING, "The theory of rate process", Mc Gaw Hill Book Company, 1941.
- [66] J.P.CRINE, "The compensation law and polymer aging relaxations", Proceeding 3<sup>rd</sup> International Conference on Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics, pp.321-325, 1985.
- [67] J.P.CRINE, J.L.PARPAL, G.LESSARD, "A model of aging of dielectric extruded cables", Proceeding 3<sup>rd</sup>. International Conference on Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics, pp.347-351, July. 1989.
- [68] J.P.CRINE, J.L.PARPAL, Chinh DANG, "A new approach to the electric aging of dielectrics", Annual Report, Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, pp.161-167, Oct.1989.
- [69] J.P.CRINE, A.K.VIJH, "Influence of the cohesive energy density of polymers and of the nature of metal-polymer interface on the contact charging of polymers", pp.284-289, CEIDP, Ottawa, Oct. 1988.
- [70] S.M.GUBANSKI, "Analysis of life time estimation methods based on data for electro-thermally aged PET films", Conference Record of the 1990 IEEE International Symposium on Electrical Insulation, Toronto, pp.27-30, 1990.

- [71] N.KHALECHE, A.BOUBAKEUR, C.LAURENT, "Initiation des arborescences électriques dans le polyéthylène basse densité", Les Troisièmes Journées Maghrébines des sciences des matériaux Alger 1992 (proceeding à paraitre)
- [72] S.S.BAMJI, A.T.BULINSKI, R.J.DENSLEY, "The effect of sample on electrical tree resistance tests" Proceeding of 1<sup>st</sup> Int. Conf. on Cond. and Break. in Sol. Diel., Toulouse July 4-8, pp.425-431, 1983.
- [73] J.PERRET, P.RECOUPE, "Projet de code d'essai: tenue aux arborescences électriques des matériaux synthétiques pour câbles"
- [74] A.C.ASCHRAFT, R.M.EICHHORN, R.G.SHAW, "Laboratory studies of treeing in solid dielectrics and voltage stabilization of polyethylene" IEEE International Symposium on Electrical Insulation, June 14-15, pp.213-218, 1976.
- [75] D.BURKLE, ATO chimie, "Mesure des contraintes résiduelles dans les pièces moulées".
- [76] J.PERRET, LEGALL, RECOUPE, "Contribution à l'étude de mécanisme de formation et de propagation des arborescences dans le polyéthylène pour câbles haute tension", Revue Générale de l'Electricité, Tome 85, n°9, pp.737-747, Sept. 1976.
- [77] T.HIBMA, H.R.ZELLER, "Direct measurement of space charge injection from a needle electrode into dielectrics", J. Appl. Phys., vol.59, pp.1614-1620, 1986.
- [78] C.LAURENT, T.LEBEY, "Mesure de courant d'injection de charge dans les diélectriques solides sous tension alternative", Revue Phys. Appl. 25 pp.423-433 Mai 1990.
- [79] A.HADID, C.LAURENT, "A new experimental technique to detect space charge injection in polymeric materials", 3rd International Conference on properties and applications of dielectrics material Tokyo, July 8-12, 1991.
- [80] P.HEDVIG, "Dielectric spectroscopy polymers", Research Institute for Plastics Budapest, Hungary. Adam Hilger LTD Bristol.
- [81] Manuel sur la DSC, LGE, UPS, Toulouse.
- [82] G.KAMPF, "Characterization of plastics by physical methods", Hanser Publishers, Munich, Vienna New York 1986.

- [83] H.CARTIER, "Plastiques", Technique de l'Ingénieur, 1986.
- [84] M.CHAVANNE, A.JULLIEN, G.J.BEAUDOIN, E.FLAMAND, "Chimie organique", Modulo Edit., 1986.
- [85] F.VIALE, J.SAMAT, G.METZGER, "Application de la spectroscopie infra-rouge à l'identification et au contrôle des isolants utilisés dans l'industrie électrique", Revue Générale de l'Electricite, T.81, n°11, pp.746-756, Novembre 1972.
- [86] Manuel sur la spectroscopie infra-rouge, LGE, UPS, Toulouse.
- [87] B.S.BERNSTEIN, A.R.COOPER, "Méthodes analytiques sensibles de diagnostic précoce du vieillissement dans une isolation solide sous contrainte de tension", CIGRE, vol.1, pp.1-6, 1988.
- [88] "An infrared spectroscopy atlas for the coatings industry".
- [89] J.GRIAC, V.ADAMEC, J.H.CALDERWOOD, "On the comparability of single and double needle testes for treeing resistance" IEEE Trans. on Elect. Insul., vol.EI-17, n°4, pp.356-358, Aug. 1982.
- [90] M.NEDJAR, "Influence du vieillissement thermique sur les propriétés du Polychlorure de Vinyle utilisé dans l'isolation des câbles haute tension", Thèse de Magister, Université de Tizi-Ouzou, 1991.
- [91] I.M.MAYOFIS, "Plastics insulating materials" London Iliffe Books LTD.
- [92] P.ROBERT, "Matériaux de l'électrotechnique", Traité d'Electricité, E.P.F.L, Press Polytechniques Romandes, 3<sup>ème</sup> Edit. 1987.
- [93] T.TANAKA, A.GREENWOOD, "Advanced-power cable technology vol.I", Basic Concepts and Testing, CRC Press, Inc. 1983.
- [94] J.GOSSOT, "Les matières plastiques, fabrication et technologie", Edit. DUNOD technique, 1977.
- [95] N.NANDA KUMAR, "Ageing and stabilization of PVC electrical insulation...a review", Popular Plastics, pp.3-9, May 1982.
- [96] A.MICHEL, "PVC thermal stability assessment using tests in the presence of stabilisers", Journal of Vinyl Technology, vol.5, n°2, pp.77-91, June 1985.

- [97] P.H.MUTIN, J.M.GUENE, "Physical gels from PVC: aging and solvent effects on thermal behavior, swelling, and compression modulus", *Macromolécules*, vol.22, n<sup>o</sup>2, pp.843-848, 1989.
- [98] L.C.E.STRUICK, "The physical aging of rigid PVC at temperatures above  $T_g$ ", *Plastics and Rubber Processing and Applications*, vol.7, n<sup>o</sup>2, pp.77-83, 1987.
- [99] L.C.E.STRUICK, "Physical aging and thermal history effects in PVC, both above and below  $T_g$ ", *Pure and Appl. Chem.*, vol.53, pp.476-469, 1981.
- [100] G.C.MONTANARI, G.PATTINI, "Thermal endurance evaluation of insulating materials: a theoretical and experimental analysis", *IEEE Trans. on Elect. Insul.* vol.EI-21, n<sup>o</sup>1, pp.69-77, February 1986.
- [101] J.P.CRINE, "A new analysis of the results of thermally stimulated measurements in polymers", *J. Appl. Phys.*, vol.66, n<sup>o</sup>3, pp.1308-1313, 1 Aug. 1989.
- [102] J.F.MAY, "technologie et transformation des matières plastiques", cours Troisième fascicule. Université de Saint- Etienne. U.E.R. de Sciences.
- [103] G.GEUSKENS, "Degradation and stabilization of polymers", S.A. Applied Science Publishers LTD, London 1975.
- [104] G.METZGER, M.PAYS, "Propriétés résiduelles de câbles de PVC prélevés en centrale. Corrélation entre les propriétés chimiques et les performances électriques", *JICABLE 1991*, Third Inter. Conf. on Polymer Insulated Power Cables, pp.312-317, Versailles 24-28 Juin 1991.
- [105] K.MIYAIRI, Y.OHTA, M.IEDA, "The compensation law in electric conduction and dielectric relaxation for Polyvinyl Chloride", *J. Phys.D. Appl. Phys.* 21, pp.1519-1523, 1988.
- [106] T.GANTCHEVA, A.MARINOVA, P.GENOVA, "Variations in some of the properties of PVC sheets during natural and artificiel ageing", *Die Angewandte Maktomolekulare Chemie.* 137, pp.49-55, 1985.
- [107] R.OUAHES, B.DEVALLEZ, "Chimie Générale", SNED, Alger 1981.
- [108] J.P.CRINE, A.K.VIJH, "On the relation between the cohesive energy density and the electric strength of solid polymer dielectrics", CEIDP, Ottawa, Oct.1988.

- [109] T.SHIMANOUCI, S.TSUCHIYA, S.I.MIZUSHIMA, "C-Cl stretching frequencies and molecular structure of Polyvinyl Chloride", Letters to the editor, pp.1365-1366, Decembre 1958.
- [110] R.A.BURLEY, W.J.BENNETT, "Spectroscopic analysis of Polyvinyl Chloride compounds. Part I. Infrared spectrometric analysis", Applied Spectroscopy, vol.14, n<sup>o</sup>2, pp.32-38, 1960.



## Tables des Matières

<u>INTRODUCTION</u>	1
<u>Chapitre I: Phénomène d'arborescence</u>	4
I-1-Les arborescences électriques	5
I-1-1-Caractéristiques des arborescences électriques	6
I-1-1-1-Influence des différents paramètres	9
a-Le champ électrique	
b-Le mode d'alimentation	
c-La nature du matériau	
d-Les paramètres d'état: la température et la pression	
I-1-1-2-Mécanismes des arborescences électriques	13
a-Phase d'initiation	13
$\alpha$ -Action des décharges partielles	
$\beta$ -Rupture électromécanique du matériau	
$\gamma$ -Action des électrons chauds	
b-Phase de propagation	17
I-1-2-Facteurs pouvant limiter le phénomène d'arborescence électrique	19
I-2-Les arborescences électrochimiques ou d'eau	19
I-2-1-Caractéristiques des arborescences d'eau	20
I-2-1-1-Influence des différents paramètres	21
a-Amplitude du champ électrique	
b-Fréquence du champ électrique	
c-Température	
d-Nature du matériau	
e-Electrolyte	
I-2-2-Microscopie optique des arborescences d'eau	22
Conclusion	23
<u>Chapitre II: Méthodes et modèles d'évaluation de la durée de vie des isolants solides</u>	24
II-1-Principe et méthode d'évaluation de la durée de vie d'un isolant solide	25
II-1-1-Choix de la statistique de Weibull	25
II-1-2-Description stastique de la rupture	26
II-1-2-1-Réprésentation E(t): loi de type puissance	27
II-1-2-2-Réprésentation P(E): courbe de Weibull	28
II-1-3-Utilisation pratique de la statistique de Weibull	28
II-1-4-Signification pratique de la statistique de Weibull	29
II-2-Modèles de durée de vie	30
II-2-1-Modèle de Puissance d'Inverse	30

II-2-2-Modèle Exponentiel	31
II-2-3-Modèle de Fallou	31
II-2-4-Modèle de Ramu	32
II-2-5-Modèle de Simoni	33
II-2-5-1-Equations de vieillissement	34
II-2-5-2-Cas de contraintes électro-thermique combinées	35
II-2-6-Modèle de Montanari	37
II-2-7-Modèle de Crine	40
II-2-7-1-Application au vieillissement électrique	41
II-2-7-2-Interprétation du phénomène de vieillissement électrique	42
<u>Chapitre III-Techniques expérimentales</u>	45
III-1-Mise en oeuvre des échantillons	46
III-1-1-Mise en oeuvre des éprouvettes	46
III-1-2-Mode d'insertion des aiguilles dans le polymère	47
III-1-3-Mode opératoire du moulage	49
III-2-Les dispositifs d'essais	51
III-2-1-Détermination des temps d'incubation	51
III-2-2-Mesure des tensions seuils	52
III-2-3-Détermination des tensions et des temps de rupture	53
III-2-4-Détermination de la température de transition vitreuse par analyse calorimétrique différentielle	56
2-4-1-Appareillage	56
2-4-2-Facteurs expérimentaux affectant la précision des résultats	58
2-4-3-Mesure des températures de transition	59
III-2-5-La spectroscopie d'absorption infra-rouge	61
2-5-1-Généralités	61
2-5-2-Appareillage	62
<u>Chapitre IV: Incubation des arborescences électriques dans le polyéthylène</u>	64
IV-1-Le polymère étudié	65
IV-2-Mesure sur la phase d'incubation	65
IV-3-Traitement statistique sur la phase d'incubation dans le Polyéthylène	71
IV-4-Discussion-Essais d'interprétation	73
IV-4-1-Détermination du champ électrique dans le Polyéthylène	73
IV-4-2-Détermination des tensions seuils	73

<u>Chapitre V: Influence du vieillissement thermique sur la</u>	78
<u>rupture par arborescence dans le PVC</u>	
V-1-Polychlorure de Vinyle	78
V-2-Vieillissement thermique du PVC et histoire thermique	80
V-2-1-Le vieillissement	80
V-2-2-Vieillissement thermique du PVC	80
V-2-3-Histoire thermique du PVC	81
V-3-Mesure des tensions et des temps de rupture du PVC vieilli thermiquement	83
V-4-Mesure des températures de transition vitreuse	89
V-5-Traitement statistique de la rupture dans le PVC	90
V-6-Détermination du champ électrique dans le PVC	92
V-7-Modélisation du phénomène de vieillissement du PVC	94
V-7-1-Application du modèle de Crine	94
V-8-Essai d'interprétation du mécanisme régissant le claquage	101
V-8-1-Résultats de mesure	101
V-8-2-Essai d'interprétation	104
V-9-Analyse des résultats de mesure de la température de transition vitreuse	107
V-9-1-Résultats de mesure	107
V-9-2-Essai d'interprétation	108
V-9-3-Corrélation tensions et temps de rupture avec $T_g$	110
V-10-Mesures effectués sur le résidu de dégradation	112
 <u>CONCLUSION</u>	 116
 <u>ANNEXE</u>	 120
 <u>Bibliographie</u>	 127
 <u>Table des Matières</u>	 137