

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique  
Ecole Nationale Polytechnique

Et  
Université de Mons



Département d'Electrotechnique

*Laboratoire de Recherche en Electrotechnique*

## Thèse de Doctorat en Électrotechnique

Pour l'obtention du titre de

**Docteur ès Sciences en Électrotechnique**

Thème

*Evaluation et suivi du vieillissement du  
revêtement polymère des isolateurs composites à  
haute tension*

Présenté par :

**Yacine Abderrahmane BENCHERIF**

Magister en Génie Electrique

### Composition du Jury :

<b>Présidente :</b>	Mme. Véronique MOEYAERT	Professeur à l'UMONS
<b>Directeur :</b>	M. Abdelouahab MEKHALDI	Professeur à l'ENP
<b>Co-Directeurs :</b>	M. Jacques LOBRY Mme. Marjorie OLIVIER	Professeur à l'UMONS Professeur à l'UMONS
<b>Membres :</b>	M. Ahmed BOUBAKEUR M. Omar JBARA M. Marc POORTEMAN	Professeur à l'ENP Professeur à l'Université de Champagne-Ardenne Docteur à l'UMONS

ENP 2019



REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique  
Ecole Nationale Polytechnique

Et  
Université de Mons



Département d'Electrotechnique

*Laboratoire de Recherche en Electrotechnique*

## Thèse de Doctorat en Électrotechnique

Pour l'obtention du titre de

**Docteur ès Sciences en Électrotechnique**

Thème

*Evaluation et suivi du vieillissement du  
revêtement polymère des isolateurs composites à  
haute tension*

Présenté par :

**Yacine Abderrahmane BENCHERIF**

Magister en Génie Electrique

### Composition du Jury :

<b>Présidente :</b>	Mme. Véronique MOEYAERT	Professeur à l'UMONS
<b>Directeur :</b>	M. Abdelouahab MEKHALDI	Professeur à l'ENP
<b>Co-Directeurs :</b>	M. Jacques LOBRY Mme. Marjorie OLIVIER	Professeur à l'UMONS Professeur à l'UMONS
<b>Membres :</b>	M. Ahmed BOUBAKEUR M. Omar JBARA M. Marc POORTEMAN	Professeur à l'ENP Professeur à l'Université de Champagne-Ardenne Docteur à l'UMONS

*A ma mère et mon père*

*A mon épouse*

*Je dédie ce travail.*

# Remerciements

Ce manuscrit se veut être le résultat du travail de thèse en cotutelle que j'ai réalisé au Laboratoire de Recherche en Électrotechnique (LRE) de l'École Nationale Polytechnique d'Alger (ENP) et à l'Université de Mons (UMONS).

Je souhaite remercier en premier lieu l'ensemble des membres du jury pour avoir accepté d'évaluer mon travail de thèse.

J'adresse ma profonde gratitude et mes sincères remerciements à Monsieur Abdelouahab MEKHALDI pour son encadrement tout au long de ce travail.

Mes vifs remerciements et gratitudes s'adressent à Monsieur Jacques LOBRY et Madame Marjorie OLIVIER pour avoir accepté de m'encadrer et de m'accueillir au sein l'UMONS.

Mes remerciements vont également à Madame Véronique MOEYAERT qui m'a fait l'honneur de présider le jury ainsi qu'à Monsieur Ahmed BOUBAKEUR et Monsieur Omar JBARA pour avoir accepté d'examiner mon travail de thèse.

Je tiens à remercier également Monsieur Marc POORTEMAN et Madame Leila BONNAUD de m'avoir orienté et guidé. J'ai particulièrement aimé travailler avec eux durant mes séjours à Mons.

Mes remerciements vont aux membres du centre de recherche MateriaNova ainsi que ceux du service de génie électrique et celui de sciences des matériaux de la FPMs pour toutes les orientations, les conseils et les explications qu'ils m'ont prodigué, à commencer par Madame Oltea MURARIU, Monsieur Hamid BOUDIA et Madame Samira BENALI.

Un grand MERCI à ma mère, à mon père et à mon épouse qui n'ont cessé de m'encourager et me soutenir. Je leur exprime ma reconnaissance et tout l'amour que j'ai pour eux.

الهدف من هذه الأطروحة هو دراسة سلوك العوازل المطلية بـ EPDM بعد تعرضها للضغوط التي من المحتمل أن تتعرض لها في الصحراء الجزائرية. تعرضت العينات التي شملتها الدراسة لتشيخ اصطناعي تحت إشعاع الأشعة فوق البنفسجية في درجة حرارة محكمة من أجل محاكاة الظروف الحقيقية للموقع. تم تطبيق التسخين الحراري أيضًا لدراسة تأثير التعرض الطويل لدرجة حرارة عالية. تم إجراء توصيف التسخين على مستويات هيكلية مختلفة. تم استخدام التحليل الطيفي للأشعة تحت الحمراء لتحليل فوربييه (FTIR) وتحليل الجاذبية الحرارية لدراسة سلوك المادة على المستوى الجزيئي. حددت المسعرات التفاضلية للمسح الضوئي (DSC) والمسح الضوئي الإلكتروني (SEM) والحيود بالأشعة السينية (EDS) تحويلات المواد على مقياس البنية المجهرية. تم تسليط الضوء على تأثير التسخين على الخواص العيانية مثل الكارهة للماء، قياس الألوان، الخواص الميكانيكية والكهربائية. سمح لنا التوصيف متعدد النطاقات الذي تم تنفيذه في هذه الدراسة بتحديد آليات التدهور التي تحدث لكل نوع من أنواع التسخين المطبقة في عملنا. كشف تحليل العلاقة بين الخصائص المختلفة للمادة عن وجود روابط قوية بين بعضها. على حد علمنا، لم يتم استخدام هذا النهج في مجال العلب البوليمرية للعوازل المركبة عالية الجهد. يركز الجزء الثاني من هذا العمل على تقييم شيخوخة العلب البوليمر على أداء عازل. تم إجراء حساب ميداني بناءً على محاكاة باستخدام طريقة العناصر المحددة. من أجل التخفيف من آثار تدهور المواد العازلة، تم اقتراح خوارزمية تحسين تستخدم كأداة تصميم للعوازل المركبة.

**الكلمات الدالة:** التسخين الحراري، التسخين فوق البنفسجي، EPDM، توصيف متعدد النطاق، عازل مركب، طريقة العناصر المحددة، التشخيص.

### Abstract

The aim of this thesis is to study the behavior of EPDM-coated insulators following their exposure to stresses to which they are likely to be exposed in the Algerian desert. The samples studied were subjected to an artificial aging under ultraviolet radiation at controlled temperature in order to simulate the real conditions of the site. Thermal aging has also been applied to study the effect of prolonged exposure to high temperature. Characterization of aging was performed at different structural scales. Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR) and thermogravimetric analysis have been used to study the behavior of the material at the molecular scale. Differential scanning calorimetry (DSC), scanning electron microscopy (SEM), and Energy Dispersive X-ray Spectroscopy (EDS) have defined material transformations at the microstructural scale. The consequence of accelerated aging stresses on macroscopic properties such as hydrophobicity, colorimetry, mechanical and electrical properties were highlighted. The multi-scale characterization carried out in this study allowed us to define the degradation mechanisms that occur for each type of accelerated aging applied in our work. The analysis of the correlation between the different properties of the material has revealed strong couplings between some of them. To our knowledge, this approach has never been used in the field of polymer housings for high voltage composite insulators. The second part of this work focuses on the assessment of the aging of the polymer housings on the performance of the insulator. A field calculation was carried out based on a simulation using the finite element method. In order to mitigate the effects of the degradation of the insulating material, an optimization algorithm used as a design tool of the composite insulators has been proposed.

**Keywords:** Thermal aging, UV aging, EPDM, multi-scale characterization, composite insulator, finite elements method, diagnostics.

### Résumé

L'objectif de cette thèse est d'étudier le comportement des isolateurs à revêtement en EPDM suite à leur exposition à des contraintes auxquelles ils sont susceptibles d'être exposés dans le désert algérien. Les échantillons étudiés ont été soumis à un vieillissement artificiel sous rayonnement ultraviolet à température contrôlée afin de simuler les conditions réelles du site. Un vieillissement thermique a également été appliqué afin d'étudier l'effet d'une exposition prolongée à une forte température. La caractérisation du vieillissement a été effectuée à différentes échelles structurales. La spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) et l'analyse thermogravimétrique ont permis d'étudier le comportement du matériau à l'échelle moléculaire. La calorimétrie différentielle à balayage (DSC), le microscope électronique à balayage (MEB) ainsi que la Spectroscopie à rayons X à dispersion d'énergie (EDS) ont défini les transformations du matériau à l'échelle microstructurale. Les conséquences des contraintes de vieillissement accéléré sur des propriétés macroscopiques telles que l'hydrophobicité, la colorimétrie, les propriétés mécaniques et électriques ont été mises en évidence. La caractérisation multi-échelles réalisée dans cette étude a permis de définir les mécanismes de dégradation ayant lieu pour chaque type de contraintes faisant l'objet de notre travail. L'analyse de la corrélation entre les différentes propriétés du matériau a laissé apparaître de forts couplages entre certaines d'entre elles. À notre connaissance, cette approche n'a jamais été utilisée dans le domaine des revêtements polymères des isolateurs composite à haute tension. La deuxième partie de ce travail porte sur l'évaluation de l'effet du vieillissement du revêtement de l'isolateur sur les performances de ce dernier. Un calcul de champ a été effectué sur la base d'une simulation faisant appel à la méthode des éléments finis. Afin d'atténuer les effets de la dégradation du matériau isolant, un algorithme d'optimisation utilisé comme outil d'aide à la conception des isolateurs composites a été proposé.

**Mots-Clés :** Vieillissement thermique, Vieillissement UV, EPDM, caractérisation multi-échelles, isolateur composite, méthode des éléments finis, diagnostics.

# Table des Matières

RESUME

LISTE DE FIGURES

LISTE DES TABLEAUX

INTRODUCTION GÉNÉRALE.....	13
I. ETAT DE L'ART SUR LE VIEILLISSEMENT DES ISOLATEURS COMPOSITES A REVÊTEMENT EN POLYMERE.....	16
I.1. Introduction.....	17
I.2. Construction des isolateurs composites à haute tension.....	17
I.3. Mécanismes de vieillissement du matériau isolant .....	18
I.3.1. Vieillissement physique .....	19
I.3.2. Vieillissement chimique.....	19
I.4. Mécanismes de vieillissement des isolateurs composites .....	21
I.4.1. Vieillissement biologique.....	22
I.4.2. Vieillissement chimique.....	23
I.4.3. Vieillissement électrique.....	24
I.4.4. Vieillissement mécanique .....	25
I.5. Méthodes de suivi du vieillissement des isolateurs composites.....	25
I.6. Méthodes de vieillissement des isolateurs composites.....	26
I.6.1. Vieillissement naturel.....	27
I.6.2. Vieillissement artificiel .....	27
I.7. Conclusion.....	29
II. MATÉRIAU ET TECHNIQUES EXPÉRIMENTALES.....	31
II.1. Matériau de l'étude et préparation .....	32
II.1.1. Présentation du matériau.....	32
II.1.2. Préparation des échantillons .....	34
II.2. Conditions de vieillissement accéléré.....	34
II.2.1. Vieillissement thermique accéléré .....	34
II.2.2. Vieillissement photochimique accéléré .....	35
II.3. Techniques de caractérisation multi-échelles du vieillissement .....	35
II.3.1. Echelle moléculaire.....	36
II.3.2. Echelle microstructurale .....	38

II.3.3. Echelle macroscopique .....	40
II.3.4. Analyse électrique.....	44
II.4. Analyse de la corrélation .....	46
II.4.1. Coefficient de corrélation .....	47
II.4.2. Test de significativité.....	48
II.4.3. Analyse graphique .....	48
II.5. Conclusion .....	49
<b>III. CARACTERISATION MULTI-ÉCHELLE DU VIEILLISSEMENT THERMIQUE DE L'EPDM .....</b>	<b>50</b>
III.1. Echelle moléculaire .....	51
III.1.1. Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier.....	51
III.1.2. L'analyse thermogravimétrique.....	53
III.2. Echelle microstructurale .....	54
III.2.1. La calorimétrie différentielle à balayage (DSC).....	55
III.2.2. Microscope électronique à balayage (MEB) .....	56
III.2.3. Spectroscopie à rayons X à dispersion d'énergie.....	57
III.3. Echelle macroscopique .....	58
III.3.1. L'analyse thermomécanique dynamique (DMA) .....	58
III.3.2. Essais mécaniques .....	59
III.3.3. Analyse de la colorimétrie.....	61
III.3.4. Analyse électrique .....	62
III.4. Evaluation de la corrélation entre les paramètres représentatifs du vieillissement .....	63
III.5. Conclusion.....	66
<b>IV. CARACTERISATION MULTI-ÉCHELLE DU VIEILLISSEMENT DE L'EPDM SOUS RAYONNEMENT ULTRAVIOLET .....</b>	<b>68</b>
IV.1. Echelle moléculaire .....	69
IV.1.1. Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier.....	69
IV.1.2. L'analyse thermogravimétrique .....	70
IV.2. Echelle microstructurale.....	71
IV.2.1. La calorimétrie différentielle à balayage (DSC) .....	71
IV.2.2. microscope électronique à balayage (MEB).....	72
IV.2.3. Spectroscopie à rayons X à dispersion d'énergie.....	73
IV.3. Echelle macroscopique.....	74
IV.3.1. L'analyse thermomécanique dynamique (DMA).....	74
IV.3.2. Mesure de la dureté .....	74



IV.3.3. Evaluation de l'hydrophobicité .....	75
IV.3.4. Analyse de la colorimétrie.....	76
IV.3.5. Analyse électrique .....	76
IV.4. Evaluation de la corrélation entre les paramètres représentatifs du vieillissement .....	78
IV.5. Conclusion.....	80
<b>V. ÉVALUATION DE L'IMPACT DU VIEILLISSEMENT D'UN ISOLATEUR COMPOSITE SUR LA DISTRIBUTION DU CHAMP ÉLECTRIQUE .....</b>	<b>82</b>
V.1. Introduction .....	83
V.2. Effets du vieillissement sur le revêtement des isolateurs composites.....	83
V.3. Modélisation par éléments finis.....	84
V.3.1. Description de l'isolateur faisant l'objet de la simulation .....	84
V.3.2. Caractéristiques des matériaux .....	85
V.3.3. Conditions aux limites .....	86
V.3.4. Maillage .....	86
V.3.5. Configuration du module de résolution .....	86
V.4. Simulation et interprétations des résultats .....	87
V.4.1. Influence de la variation de la permittivité diélectrique du revêtement de l'isolateur sur la distribution du champ électrique .....	88
V.4.2. Influence de la variation de l'hydrophobicité du revêtement de l'isolateur sur la distribution du champ électrique.....	98
V.5. Optimisation de la construction de l'isolateur pour la minimisation de l'effet de son vieillissement .....	99
V.6. Conclusion.....	102
<b>CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES .....</b>	<b>103</b>
<b>RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES .....</b>	<b>107</b>

# Liste des Tableaux

Tableau 1: Matériaux isolants solides et leurs applications [21].....	18
Tableau 2: Composition de l'EPDM industriel utilisé dans cette étude .....	34
Tableau 3: Résumé du protocole de vieillissement thermique.....	34
Tableau 4: Résumé du protocole de vieillissement photochimique .....	35
Tableau 5: Attribution des principales bandes caractéristiques de l'EPDM [4, 49, 80-83].....	37
Tableau 6: Evolution de l'indice carbonylé (IC) en fonction de la température et de la durée du vieillissement thermique.....	52
Tableau 7: Résumé des résultats de mesure TGA & DTG pour un EPDM neuf et vieilli thermiquement.....	54
Tableau 8: Résumé des résultats de mesure DSC pour un EPDM neuf et vieilli thermiquement .	55
Tableau 9: Résumé des mesures EDS pour un EPDM vieilli à 100°C .....	57
Tableau 10: Résumé des mesures EDS pour un EPDM vieilli à 140°C .....	57
Tableau 11: Récapitulatif des coefficients de corrélation de rang de Kendall pour un EPDM vieilli à 120°C .....	64
Tableau 12: Récapitulatif des p-valeurs pour un EPDM vieilli à 120°C .....	64
Tableau 13: Résumé des résultats de mesure TGA & DTG pour les échantillons vieillis sous rayonnement ultraviolet.....	71
Tableau 14: Résumé des résultats de mesure DSC pour un EPDM neuf et vieilli sous rayonnement ultraviolet.....	72
Tableau 15: Résumé des mesures EDS pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.....	73
Tableau 16: Récapitulatif des coefficients de corrélation de rang de Kendall pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.....	78
Tableau 17: Récapitulatif des p-valeurs pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.....	78
Tableau 18: Caractéristiques des composants de l'isolateur composite faisant l'objet de cette étude .....	86
Tableau 19: Caractéristiques du revêtement avant et après vieillissement .....	100
Tableau 20: Intervalles de variation des paramètres d'optimisation.....	100
Tableau 21: Paramètres d'optimisation utilisés pour la minimisation de $F_A$ .....	102

# Liste des Figures

Figure 1: Isolateur composite.....	17
Figure 2: Facteurs impliqués dans le vieillissement des isolateurs composites.....	21
Figure 3: Processus de vieillissement des isolateurs composites [32]. .....	22
Figure 4: Isolateur attaqué par des champignons à gauche et le Lichen à droite [33]. .....	23
Figure 5: Processus de vieillissement des surfaces composites [38].....	24
Figure 6: Méthodes de caractérisation du vieillissement [32].....	26
Figure 7: Comparaison du spectre de rayonnement artificiel par lampe fluorescentes UVA et celui du rayonnement solaire [61]. .....	28
Figure 8: Structure chimique du monomère d'EPDM de type ENB [72].....	32
Figure 9: Représentation graphique d'un système ATR à réflexion multiple. ....	37
Figure 10: Analyse thermogravimétrique sous air et sous azote.....	38
Figure 11: Montage d'un appareillage d'analyse calorimétrique différentielle [85]. ....	39
Figure 12: Transitions d'un polymère déterminées par DSC. $T_G$ , transition vitreuse ; $T_C$ , cristallisation ; $T_M$ , fusion [78]. .....	39
Figure 13: Représentation de l'interaction entre un faisceau d'électrons et la surface d'un échantillon [86]. .....	40
Figure 14: Dimensions en millimètres des haltères soumises aux essais mécaniques de traction. ....	41
Figure 15: Niveaux d'hydrophobicité classifiés par la méthode HC [89]. .....	42
Figure 16: Calcul de l'angle de contact sur la surface d'un isolateur. ....	42
Figure 17: Espace orthonormé CIE-L*A*b* [91]. .....	43
Figure 18: Schéma électrique du pont de Schering.....	44
Figure 19: Electrodes circulaires avec anneau de garde.....	45
Figure 20: Circuit de mesure de la résistance volumique. ....	46
Figure 21: Circuit de mesure de la résistance surfacique.....	46
Figure 22: Types de liaisons entre deux variables [95]. .....	47
Figure 23: Evolution du spectre FTIR de l'EPDM lors de son vieillissement thermique à 100°C. ....	51
Figure 24: Evolution du spectre FTIR de l'EPDM lors de son vieillissement thermique à 120°C. ....	51
Figure 25: Evolution du spectre FTIR de l'EPDM lors de son vieillissement thermique à 140°C. ....	52

Figure 26: Thermo-grammes TGA et DTG d'un échantillon neuf.....	53
Figure 27: (A) Thermo-gramme TGA; (B) Thermo-gramme DTG d'échantillons neufs et vieillis thermiquement.....	53
Figure 28: Thermogramme DSC du premier cycle d'échauffement d'un échantillon neuf. ....	55
Figure 29: Evolution de la microstructure de surface d'un EPDM vieilli à 100°C.....	56
Figure 30: évolution de la microstructure de surface d'un EPDM vieilli à 140°C. ....	56
Figure 31: Tracé du facteur d'amortissement en fonction de la température pour un EPDM vieilli à 100°C.....	58
Figure 32: Tracé du facteur d'amortissement en fonction de la température pour un EPDM vieilli à 120°C.....	59
Figure 33: Tracé du facteur d'amortissement en fonction de la température pour un EPDM vieilli à 140°C.....	59
Figure 34: Evolution de l'allongement à la rupture en fonction du temps pour un EPDM vieilli thermiquement.....	60
Figure 35: Evolution de la dureté en fonction du temps pour un EPDM vieilli thermiquement. ..	61
Figure 36: Evolution du changement de couleur dans l'espace CIE-L*A*B* en fonction du temps pour un EPDM vieilli thermiquement. ....	61
Figure 37: Evolution de la permittivité relative en fonction du temps pour un EPDM vieilli thermiquement.....	62
Figure 38: Evolution de la permittivité relative en fonction du temps pour un EPDM vieilli thermiquement.....	63
Figure 39: Courbe de liaison de la permittivité relative avec la résistivité volumique pour un EPDM vieilli à 120°C. ....	65
Figure 40: Courbe de liaison de l'allongement à la rupture avec le changement de couleur pour un EPDM vieilli à 120°C. ....	65
Figure 41: Courbe de liaison de l'allongement à la rupture avec la dureté pour un EPDM vieilli à 120°C.....	66
Figure 42: Courbe de liaison de la dureté avec le changement de couleur pour un EPDM vieilli à 120°C.....	66
Figure 43: Evolution du spectre FTIR de l'EPDM lors de son vieillissement sous rayonnement ultraviolet.....	69
Figure 44: Evolution de l'indice carbonylé de l'EPDM lors de son vieillissement sous rayonnement ultraviolet.....	69
Figure 45: (A) Thermo-gramme TGA; (B) Thermo-gramme DTG d'échantillons neufs et vieillis sous rayonnement ultraviolet.....	71

Figure 46: Thermo-grammes DSC du premier cycle d'échauffement d'un EPDM neuf et vieilli sous rayonnement ultraviolet.....	72
Figure 47: Evolution de la microstructure de Surface d'un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.....	73
Figure 48: Thermo-gramme du facteur d'amortissement pour des échantillons neufs et vieillis sous rayonnement ultraviolet.....	74
Figure 49: Evolution de la dureté en fonction du temps pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.....	75
Figure 50: Evolution de l'angle de contact en fonction du temps pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.....	75
Figure 51: Evolution du changement de couleur dans l'espace CIE-L*a*b* en fonction du temps pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.....	76
Figure 52: Evolution du facteur de perte diélectrique en fonction du temps pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.....	77
Figure 53: Evolution de la résistivité surfacique en fonction du temps pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.....	77
Figure 54: Courbe de liaison de l'indice carbonylé avec le ratio O/C pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.....	79
Figure 55: Courbe de liaison de l'indice carbonylé avec la résistivité surfacique pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.....	79
Figure 56: Courbe de liaison de l'angle de contact avec facteur de perte diélectrique pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.....	80
Figure 57: Isolateur composite faisant l'objet de cette étude.....	85
Figure 58: Maillage appliqué au modèle faisant l'objet de la simulation.....	87
Figure 59: Localisation des zones faisant l'objet d'un calcul de champ électrique.....	88
Figure 60: distribution du champ électrique généré par un isolateur propre.....	89
Figure 61: distribution du champ tangentiel le long de la ligne de fuite de l'isolateur au voisinage de l'électrode d'un isolateur propre.....	89
Figure 62: distribution du champ tangentiel le long de la ligne de fuite d'un isolateur propre au niveau de la zone Z2.....	90
Figure 63: Variation du champ maximal dans les diverses zones de l'isolateur en fonction de la valeur de la permittivité de son revêtement.....	91
Figure 64: Variation du facteur d'altération ( $F_A$ ) dans les diverses zones de l'isolateur en fonction de la valeur de la permittivité de son revêtement.....	91
Figure 65: Distribution du champ électrique tangentiel généré par un isolateur recouvert d'une pollution uniforme avec une conductivité $\sigma=5.10^{-6}$ S/m.....	92

Figure 66: Distribution du champ électrique tangentiel le long de la ligne de fuite de l'isolateur dans le cas d'une pollution uniforme avec une conductivité $\sigma=2.10^{-7}$ S/m. ....	92
Figure 67: Variation du champ maximal dans les diverses zones de l'isolateur en fonction de la valeur de la permittivité de son revêtement pour différentes valeurs de la conductivité de la couche de pollution. ....	93
Figure 68: Variation du facteur d'altération ( $F_A$ ) dans les diverses zones de l'isolateur en fonction de la valeur de la permittivité de son revêtement pour différentes valeurs de la conductivité de la couche de pollution. ....	93
Figure 69: Configuration des gouttelettes recouvrant l'isolateur. ....	94
Figure 70: Distribution du champ tangentiel le long de la ligne de fuite dans le cas d'un isolateur recouvert de gouttelettes d'eau. ....	95
Figure 71: Distribution du champ tangentiel le long de la ligne de fuite dans le cas d'un isolateur recouvert de gouttelettes d'eau dans le voisinage des électrodes. ....	96
Figure 72: Distribution du champ tangentiel le long de la ligne de fuite dans le cas d'un isolateur recouvert de gouttelettes d'eau au niveau de la zone Z3. ....	96
Figure 73: Variation du champ maximal dans les diverses zones de l'isolateur en fonction de la valeur de la permittivité de son revêtement. ....	97
Figure 74: Variation du facteur d'altération ( $F_A$ ) dans les diverses zones de l'isolateur en fonction de la valeur de la permittivité de son revêtement. ....	97
Figure 75: Variation du champ tangentiel maximal dans les diverses zones de l'isolateur en fonction de la valeur de l'angle de contact. ....	98
Figure 76: Variation du facteur d'altération ( $F_A$ ) dans les diverses zones de l'isolateur en fonction de la valeur de l'angle de contact. ....	98
Figure 77: Effet de la minimisation du facteur d'impact sur les performances de l'isolateur .....	99
Figure 78: Diagramme schématisant le processus d'optimisation de la conception de l'isolateur .....	101

# **INTRODUCTION GÉNÉRALE**

---

Les polymères tel que l'éthylène-propylène-diène monomère (EPDM), qui est un type de caoutchouc synthétique composé d'éthylène, de propylène et de diène non saturé [1, 2], sont appliqués dans divers domaines techniques en raison de leurs avantages en termes de facilité de production, légèreté, ductilité, bonne résistance mécanique et un meilleur comportement à la contamination [3-5]. Parmi les applications des caoutchoucs synthétiques dont l'utilisation est très répandue, nous pouvons citer les isolateurs composites de lignes à haute tension à revêtement en EPDM. Du fait de l'utilisation de ce dernier à l'extérieur, les propriétés globales du matériau isolant sont altérées suite à son exposition aux conditions environnementales (rayonnement solaire, chaleur, ozone, etc.) [2, 6]. L'instabilité des polymères aux contraintes d'exploitation est l'un des problèmes majeurs de l'industrie des matériaux isolants. Cette instabilité est causée par plusieurs réactions chimiques telles que l'oxydation, la réticulation et la scission des chaînes [7]. Ainsi, la compréhension des mécanismes conduisant à ces réactions par l'étude du comportement du matériau vis-à-vis de chaque type de contrainte est essentielle pour l'évaluation de la durée de vie du matériau [2].

Parmi les inconvénients du vieillissement naturel, nous pouvons noter une reproductibilité difficile, un temps important de mobilisation des moyens et la difficulté à isoler chaque type de contrainte [2, 8, 9]. Ainsi, afin d'étudier l'effet distinct de chaque type de contrainte sur le matériau dans un délai raisonnable, un vieillissement artificiel en laboratoire est nécessaire.

Plusieurs travaux ont été réalisés pour étudier l'impact du vieillissement sur les caractéristiques des matériaux et définir les processus responsables de leur dégradation. La plupart de ces travaux se sont concentrés sur un nombre limité d'aspects du vieillissement, ce qui a permis d'aborder partiellement la dégradation du matériau. Zhao et al [6, 8, 10] ont effectué une altération de l'EPDM afin d'étudier son impact sur les propriétés morphologiques, thermiques et chimiques du matériau. Ehsani et Al [11] ont étudié l'impact du vieillissement thermique sur les propriétés électriques de l'EPDM. D'autres études [5, 12] portaient sur l'impact d'un vieillissement en conditions d'exploitation sur les propriétés thermiques, chimiques et diélectriques du revêtement d'un isolateur composite à haute tension.

Cependant, à notre connaissance, aucune étude n'a traité séparément les vieillissements thermique et photochimique d'un EPDM utilisé comme revêtement d'un isolant composite en effectuant une analyse multi-échelles du matériau. Cette étude consiste à évaluer l'impact du vieillissement sur les propriétés thermiques, chimiques, morphologiques, mécaniques, électriques et diélectriques du matériau. La compilation des résultats nous permet de mettre en évidence les liaisons qui peuvent exister entre les paramètres significatifs du vieillissement. Aucune des études ayant appliqué des conditions de vieillissement similaires [13, 14] ne prenaient en compte l'aspect de corrélation croisée dans l'évolution des propriétés du matériau en raison de l'application d'un nombre limité de techniques de caractérisation.

Nos travaux ont été réalisés au sein du Laboratoire de Recherche en Electrotechnique (LRE) de l'École Nationale Polytechnique d'Alger (ENP) en collaboration avec le service de génie électrique et le service de science des matériaux de la Faculté Polytechnique de Mons (FPMs). Le but de notre travail est d'étudier le comportement des isolateurs à revêtement en EPDM suite à



leur exposition à des contraintes auxquelles ils sont susceptibles d'être exposés dans le désert algérien. Les échantillons étudiés ont, ainsi, été soumis à un vieillissement artificiel sous rayonnement ultraviolet à température contrôlée afin de simuler les conditions réelles du site. Un vieillissement thermique a également été appliqué afin d'étudier l'effet d'une exposition prolongée à une forte température.

Le Chapitre I présentera une synthèse bibliographique sur les différents travaux portant sur les processus de vieillissement auxquels sont soumis les isolateurs composites. Les mécanismes de dégradation intervenant à l'échelle du matériau isolant seront abordés. Ces mécanismes interviennent d'une manière directe sur le comportement des systèmes d'isolement tels que les isolateurs de ligne à haute tension. Ainsi, la dégradation à l'échelle de l'équipement sera, à son tour, traitée dans ce chapitre. Nous allons, également, aborder les différentes techniques de vieillissement et de caractérisation permettant d'étudier les mécanismes de dégradation.

Le Chapitre II présentera les différentes techniques expérimentales utilisées dans cette étude pour la mise en œuvre des échantillons, la réalisation des essais du vieillissement, et la caractérisation des propriétés physico-chimiques, électriques et mécaniques.

Le Chapitre III et le Chapitre IV consistent à évaluer les propriétés physico-chimiques, mécaniques et diélectriques des échantillons soumis respectivement à un vieillissement thermique et un vieillissement sous rayonnement ultraviolet. L'évolution des différentes propriétés du matériau isolant au cours de son vieillissement sera étudiée. Une analyse de la corrélation entre les paramètres significatifs du vieillissement sera effectuée afin de mettre en évidence les liaisons pouvant avoir lieu entre les différentes propriétés du matériau.

Le chapitre V évalue l'impact du vieillissement du revêtement d'un isolateur composite sur les performances de ce dernier. Sur la base d'une simulation faisant appel à la méthode des éléments finis, le calcul du champ électrique le long de la ligne de fuite de l'isolateur sera effectué en fonction des différentes dégradations que peut connaître son revêtement. Afin d'atténuer les effets de la dégradation du matériau isolant, un algorithme d'optimisation utilisé comme outil d'aide à la conception des isolateurs composites sera proposé.

La conclusion générale fait le bilan des résultats de cette étude et dresse les perspectives de recherche qui en découlent.

# Chapitre

## I

# **ETAT DE L'ART SUR LE VIEILLISSEMENT DES ISOLATEURS COMPOSITES A REVÊTEMENT EN POLYMERE**

---

Dans ce chapitre nous présenterons une synthèse bibliographique sur les processus de vieillissement auxquels sont soumis les isolateurs composites. Les mécanismes de dégradation intervenant à l'échelle du matériau isolant seront abordés. La dégradation à l'échelle de l'équipement sera, à son tour, traitée. Enfin nous allons aborder les différentes techniques de vieillissement et de caractérisation permettant d'étudier les mécanismes de dégradation.

## I.1. INTRODUCTION

Depuis la fin du 19<sup>ème</sup> siècle, les isolateurs en céramique sont utilisés dans les lignes à haute tension. Plus récemment, vers la seconde partie du siècle dernier, une nouvelle génération d'isolateurs utilisant des matériaux organiques polymères a vu le jour. Les qualités de cette nouvelle génération d'isolateurs en termes de performances, particulièrement leur comportement sous pollution en général, ont contribué à leur succès et à une utilisation de plus en plus importante dans les installations électriques [15].

Parmi les inconvénients de ce type d'isolateurs, nous constatons que la surface de ceux-ci est assujettie à des dégradations lors d'une exposition à des contraintes environnementales. Ceci a pour conséquence d'affecter la durée de vie de l'équipement. Il est donc nécessaire d'étudier le comportement des isolateurs composites lorsqu'ils sont soumis à un stress environnemental. L'étude de leur vieillissement s'avère indispensable afin de garantir leur bon fonctionnement [16].

La connaissance des mécanismes à l'origine de cette dégradation et l'identification des contraintes qui en sont responsables est une démarche incontournable. Suite à cela, des dispositifs expérimentaux peuvent être mis au point afin de cibler d'une manière efficace les paramètres améliorant les performances de l'équipement.

## I.2. CONSTRUCTION DES ISOLATEURS COMPOSITES A HAUTE TENSION

La Figure 1 montre les différents constituants d'un isolateur composite de ligne à haute tension. Il apparaît à partir de cette figure que le revêtement extérieur de l'isolateur constitue un composant essentiel de l'équipement étant donné qu'il recouvre en totalité la ligne de fuite de l'isolateur. L'étude des caractéristiques du dit revêtement est donc essentielle afin de connaître le comportement global de l'isolateur vis-à-vis des conditions auxquelles il est soumis.

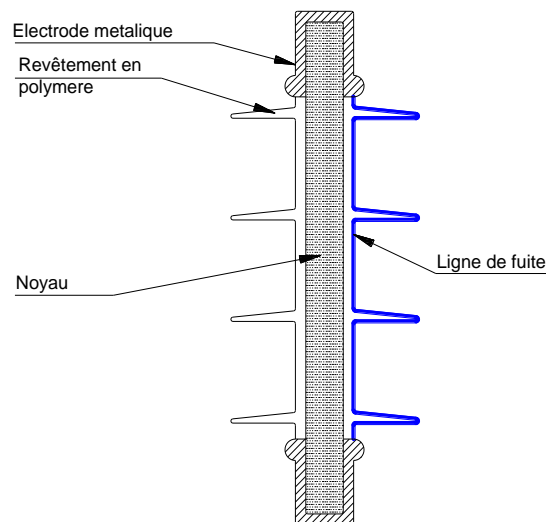


Figure 1: Isolateur composite.

Le revêtement de l'isolateur peut être fait de différents matériaux. L'EPDM et le caoutchouc de silicone sont les plus utilisés pour ce type d'application. Nous pouvons également citer le téflon, la résine d'époxy ou le béton au polymère dans une moindre mesure [17].

L'utilisation croissante des isolateurs composites et leurs avantages technologiques ont fait que ce type d'isolateur est devenu compétitif en terme de coût par rapport aux isolateurs conventionnels [18]. Néanmoins, la durée de vie des isolateurs composites demeure la préoccupation majeure des exploitants car le vieillissement de ce type d'isolation représente un facteur non négligeable dans la détérioration des propriétés isolantes sous les conditions d'utilisations.

### I.3. MECANISMES DE VIEILLISSEMENT DU MATERIAU ISOLANT

Tel qu'illustré dans le Tableau 1, plusieurs types de matériaux organiques sont utilisés en tant qu'isolants dans diverses applications tels que les câbles, les transformateurs de puissance et les isolateurs de lignes aériennes. Il apparaît ainsi que la défaillance du matériau doit être évitée afin d'assurer le bon fonctionnement des installations pour lesquelles il est dédié. Il est, ainsi, nécessaire de comprendre les mécanismes menant aux dites défaillances afin d'allonger la durée de vie de l'équipement et d'éviter sa mise hors service d'une manière non contrôlée [19].

Certains auteurs [20] définissent le vieillissement comme étant une évolution lente des propriétés du matériau à partir d'un état de référence résultant de son instabilité propre ou de l'environnement. Ces phénomènes peuvent affecter la matrice du matériau ou les additifs entrant dans sa formulation.

En raison de ce phénomène de vieillissement, la « durée de vie » du matériau est ainsi définie par le temps nécessaire pour qu'une propriété atteigne un seuil critique en dessous duquel le matériau ne remplit plus le niveau requis de la fonction à laquelle il est destiné.

Tableau 1: Matériaux isolants solides et leurs applications [21]

Type	Matériau	Applications
<b>Polymères</b>		
Thermoplastiques	PE, PRC PET PPS	Câbles Transformateurs
Elastomères	Silicone (SIR) EPR EPDM	Isolateurs
Thermodurcissables	Epoxy	Machines tournantes
<b>Composites</b>		
Composite	Epoxy/FRP Epoxy/Si, Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Epoxy/mica	Isolateurs Machines tournantes Systèmes d'isolement sous gaz

A travers la littérature, il a été possible d'identifier deux grandes familles de mécanismes responsables de la dégradation des polymères : le vieillissement physique et le vieillissement chimique.

### **I.3.1. VIEILLISSEMENT PHYSIQUE**

Le vieillissement physique est synonyme, par convention, de dégradations qui ne sont pas dues à une altération chimique du matériau. Il peut être de deux types :

#### **I.3.1.1. VIEILLISSEMENT PHYSIQUE AVEC TRANSFERT DE MASSE**

Selon qu'il y ait transfert de masse du matériau vers l'environnement ou l'inverse, on peut avoir une pénétration de solvants ou une perte d'adjuvants :

- Pénétration de solvants : Cette pénétration peut se traduire par la plastification du matériau engendrant une dégradation de ses caractéristiques mécaniques [22].
- Perte d'adjuvants : Les substances organiques de faible masse moléculaire contenues dans les polymères peuvent migrer plus ou moins lentement, sous l'effet de la température, hors du matériau. Parmi les mécanismes responsables de cette migration; nous pouvons citer l'évaporation et l'extraction [22, 23].

#### **I.3.1.2. VIEILLISSEMENT PHYSIQUE SANS TRANSFERT DE MASSE**

Ce type de dégradation ne connaît pas d'échange de matière. Il est une résultante d'une réorganisation des chaînes macromoléculaires vers une configuration plus stable.

- Modification de la morphologie : Il se traduit par une réduction du volume libre disponible dans la matrice du polymère d'où une augmentation de la compacité du réseau macromoléculaire. Il a pour effet une augmentation de la masse volumique et une diminution du coefficient de dilatation et du facteur de pertes diélectriques [1, 22, 24]. D'autres auteurs [25] ont montré que la rigidité diélectrique est également affectée par ce type de dégradation
- Fissuration : En milieu tensioactif les polymères peuvent être le siège de fissurations suite à des contraintes mécaniques appliquées aux polymères.
- Chocs thermiques : Une variation brusque de température dans un isolant organique a pour effet d'engendrer un gradient de température dans l'épaisseur du matériau provoquant une dilatation de ce dernier. Des ruptures mécaniques peuvent ainsi apparaître [26].

### **I.3.2. VIEILLISSEMENT CHIMIQUE**

C'est une réaction chimique irréversible, sous l'influence de l'environnement, provoquant un changement de la composition du matériau. La détérioration chimique du polymère connaît plusieurs formes dépendant de la nature de l'isolant dont les plus importantes sont citées comme suit :

#### **I.3.2.1. OXYDATION**

Le processus d'oxydation représente une cause non négligeable de dégradation des polymères. L'oxygène s'attaque à la chaîne de l'élastomère en entraînant des scissions [26]. C'est un phénomène lent. Il a pour conséquences la formation de produits qui engendrent l'augmentation de la conductivité. La coupure des chaînes y est également provoquée, elle est responsable d'une diminution de la charge de rupture [22, 27].

Les coupures de chaînes entraînent la diminution de la viscosité du polymère et les groupes polaires favorisent la mobilité des porteurs de charges. L'oxydation a pour effet d'introduire des dipôles électriques dans les macromolécules provoquant ainsi une augmentation du facteur de pertes diélectriques et une diminution de la rigidité diélectrique du matériau polymère [26].

La cinétique de l'oxydation est caractérisée par une période durant laquelle les propriétés du matériau subissent une évolution réduite. Ce temps d'induction est tributaire de l'antioxydant utilisé dans la formulation [28].

Ce type de réaction permet de former des hydroperoxydes (ROOH), des peroxydes (ROOR), des cétones, des aldéhydes ( $R' = O$ ) et des alcools (ROH). Ces groupes polaires favorisent la mobilité des porteurs de charges. Les essais physico-chimiques tels que la Spectroscopie Infrarouge à Transformée de Fourier (IRTF) permettent d'identifier ces produits de décomposition résultant du processus d'oxydation [29].

Il est à noter que la réaction d'oxydation peut entraîner une coupure des chaînes qui provoque une dégradation du polymère. Ces coupures de chaînes entraînent la diminution de la viscosité du polymère. Une « pseudo réticulation » avec des « ponts oxygènes » (-O-O-) peut avoir lieu suite à la réaction d'oxydation, se traduisant par une augmentation de la masse moléculaire du matériau [30].

### **I.3.2.2. RETICULATION**

Le processus de réticulation est caractérisé par la formation de ponts covalents entre les segments de chaînes voisines. Ce phénomène a pour conséquence une réduction de la souplesse de l'isolant ainsi que son aptitude à l'allongement rendant le matériau cassant [31].

Dans le cas des réseaux polymères tridimensionnels, la réticulation est synonyme d'une augmentation de la concentration en nœuds. Elle est caractérisée par une diminution du taux de gonflement et une augmentation de la température de transition vitreuse ainsi que du module d'élasticité [22].

La réticulation affecte les propriétés mécaniques du matériau en augmentant le module d'élasticité, la contrainte à la rupture et la température de ramollissement [26].

### **I.3.2.3. DEPOLYMERISATION**

La dépolymérisation est un cas particulier de la réaction de coupure de chaînes [26]. Cette dernière engendre la formation d'un site actif qui déstabilise la liaison monomère voisine

entraînant l'élimination séquentielle de molécules de monomère. Cette réaction est facilitée lorsque l'énergie de liaison monomère-monomère est faible [22].

La dépolymérisation engendre l'élimination d'un fragment moléculaire (monomère) d'où la diminution de la masse moléculaire ainsi que le rétrécissement du matériau.

### I.3.2.4. COUPURE STATISTIQUE DES CHAINES

Les coupures de chaînes statistiques se produisent sur des sites distribués de manière aléatoire dans le réseau macromoléculaire. Ces coupures peuvent être causées par divers types de mécanismes chimiques dont la thermolyse, coupure  $\beta$ , l'hydrolyse et la radiolyse [23].

Il a été montré qu'il existe une corrélation entre l'énergie de dissociation des liaisons et la stabilité thermique des polymères.

Dans le cas des polymères tridimensionnels, les coupures de chaînes provoquent une diminution du taux de réticulation. Elles affectent d'une manière significative les propriétés mécaniques du matériau [26].

## I.4. MECANISMES DE VIEILLISSEMENT DES ISOLATEURS COMPOSITES

Tel que schématisé dans la Figure 2, le phénomène de vieillissement des isolateurs composites se caractérise par les différentes transformations physiques et chimiques lors d'une exposition à différentes contraintes naturelles et environnementales pendant une certaine période de temps.

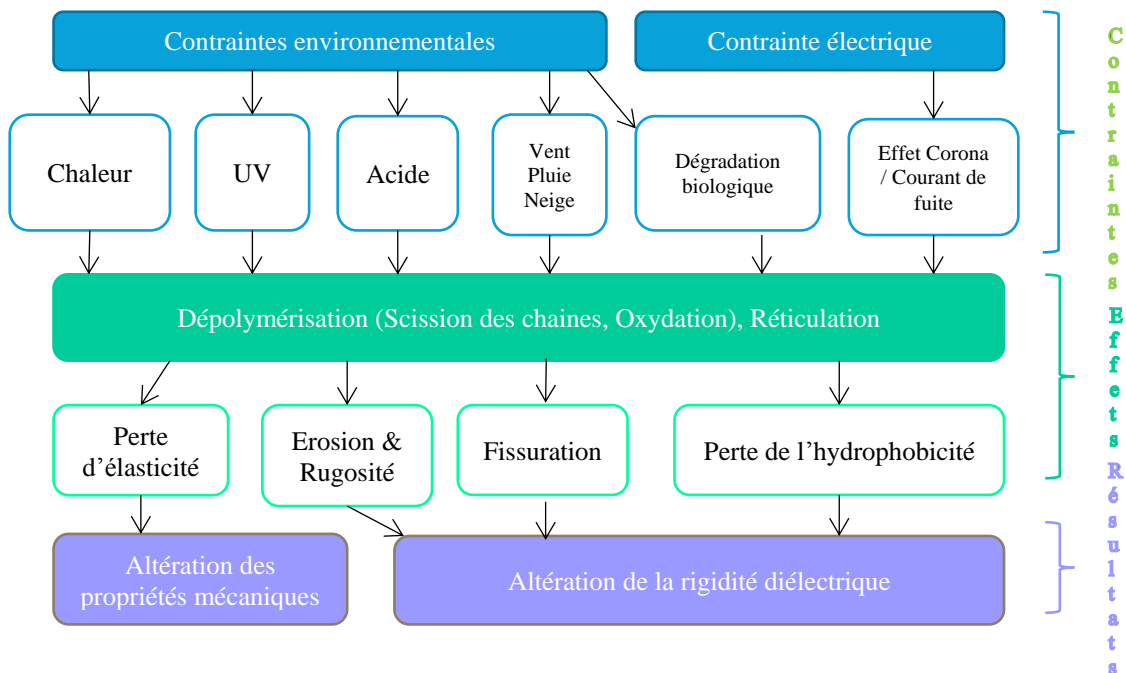


Figure 2: Facteurs impliqués dans le vieillissement des isolateurs composites.

Au vu des conditions extrêmes que peuvent présenter certaines régions, les isolateurs composites sont soumis à des dégradations pouvant conduire à une mise hors service de l'équipement. Les performances des isolateurs composites à court et à long terme sont, ainsi, une source de préoccupation.

En effet, la défaillance des isolateurs composites peut conduire à différents désagréments affectant la continuité de service des réseaux électriques. La perte des propriétés isolantes de l'isolateur en termes d'augmentation du courant de fuite et de diminution de la tension de contournement ainsi que la détérioration des propriétés mécaniques représentent les conséquences des mécanismes de vieillissement entrant dans la détermination de la durée de vie de l'isolateur.

La Figure 3 illustre les mécanismes de vieillissement causés par des facteurs agissant sur les isolateurs. Chaque type de contrainte engendre un mécanisme de vieillissement donné. Ce dernier se manifeste par la détérioration d'une ou de plusieurs caractéristiques de l'équipement. Ainsi, selon le type de contraintes auxquelles est soumis le système d'isolement, il est possible de distinguer plusieurs mécanismes dont les principaux sont les suivants :

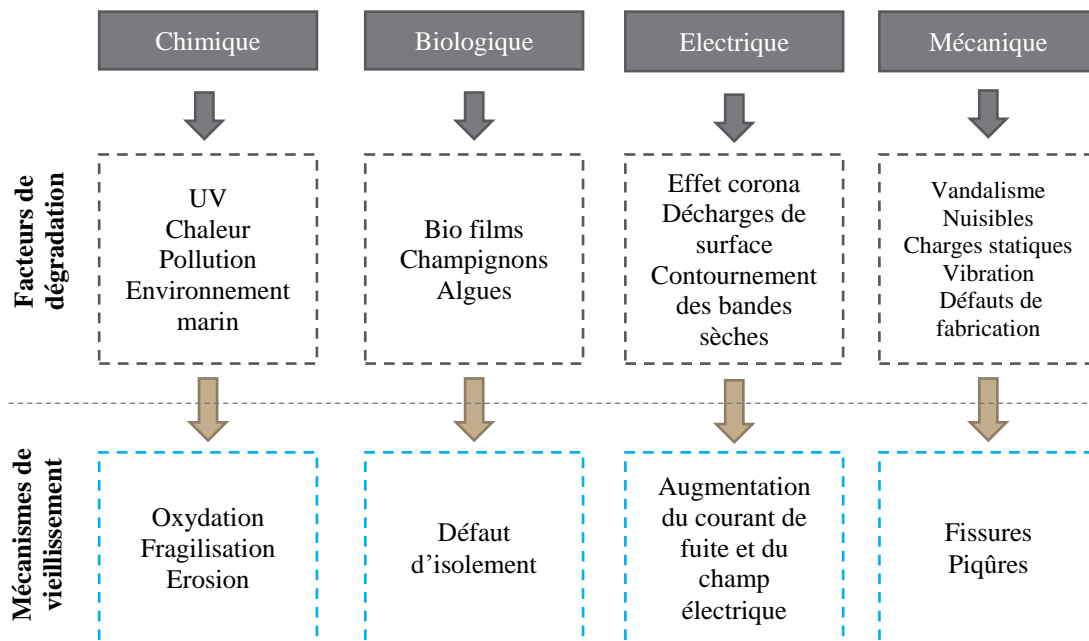


Figure 3: Processus de vieillissement des isolateurs composites [32].

#### I.4.1. VIEILLISSEMENT BIOLOGIQUE

Etant donné que les isolateurs composites sont fabriqués par des matériaux organiques, ces derniers sont susceptibles d'être attaqués par des organismes biologiques sous la forme d'un film couvrant leur surface. Parmi ces organismes, nous pouvons citer les algues, les champignons et le lichen (Figure 4).

Ces micro-organismes sont à l'origine de la détérioration de l'isolateur en causant les effets suivants : l'encrassement, la dégradation du matériau, la bio-corrosion, l'hydratation, la



décoloration du matériau, l'augmentation du courant de fuite et une diminution allant jusqu'à 30% de la tension de contournement [33].

Il a été montré que certains additifs utilisés dans la fabrication du matériau isolant favorisent le développement des organismes biologiques. Afin d'éviter ce type de désagrément, d'autres additifs sont ajoutés aux polymères les rendant plus résistants à la biodégradation [16]. L'ajout de retardant de feu tel que le zincborhydrate a pour effet de prévenir la formation des champignons [34]. Gubanski et al [33] ont, quant à eux, proposé l'ajout de biocides en tant qu'ingrédients actifs.



Figure 4: Isolateur attaqué par des champignons à gauche et le Lichen à droite [33].

#### I.4.2. VIEILLISSEMENT CHIMIQUE

Les contraintes chimiques englobent un ensemble de dégradations provoquant des processus chimiques de vieillissement.

L'activité humaine rejette différents polluants dans l'atmosphère. Cette pollution se dépose sur la surface des isolateurs et cause leur contournement lors d'une humidification. Certains polluants chimiques sont susceptibles de détériorer la surface de l'isolateur de par leurs propriétés corrosives. Plusieurs études se sont intéressées à l'effet des pluies acides sur les polymères. Il a été montré que l'augmentation du temps d'immersion dans un milieu acide a eu pour effet d'augmenter les pertes diélectriques, le courant de fuite et la rugosité de la surface de l'isolateur [35, 36].

Les contraintes climatiques telles que la chaleur, le rayonnement solaire et l'humidité sont à l'origine de l'érosion de la surface de l'isolateur et de la perte de son hydrophobicité. Ceci favorise la dégradation des propriétés diélectriques de l'isolation.

Le rayonnement ultraviolet est l'un des facteurs majeurs responsables de la dégradation des polymères. Il cause une détérioration des caractéristiques du matériau suite à la rupture des chaînes moléculaires qui le constituent. La dégradation photochimique des polymères se fait par photo-oxydation.

L'exposition prolongée à une forte température active le processus de dégradation thermochimique causant la dissociation des liaisons qui constituent la structure chimique du polymère. Plusieurs réactions s'en suivent dont la coupure des chaînes ou la réticulation.

La dégradation par hydrolyse se fait quand le matériau subit une diffusion d'eau. Elle est relativement lente à température ambiante. Ce processus commence par une phase d'absorption de l'eau par le polymère suivie par l'hydrolyse qui conduit à une fragmentation moléculaire du matériau.

### I.4.3. VIEILLISSEMENT ELECTRIQUE

L'application d'un champ électrique fort à un isolateur couplé au dépôt d'une couche de pollution à sa surface engendre la formation de décharges partielles sur le revêtement d'où l'érosion du matériau isolant ainsi que la dégradation de ses propriétés diélectriques allant jusqu'à sa rupture diélectrique [37].

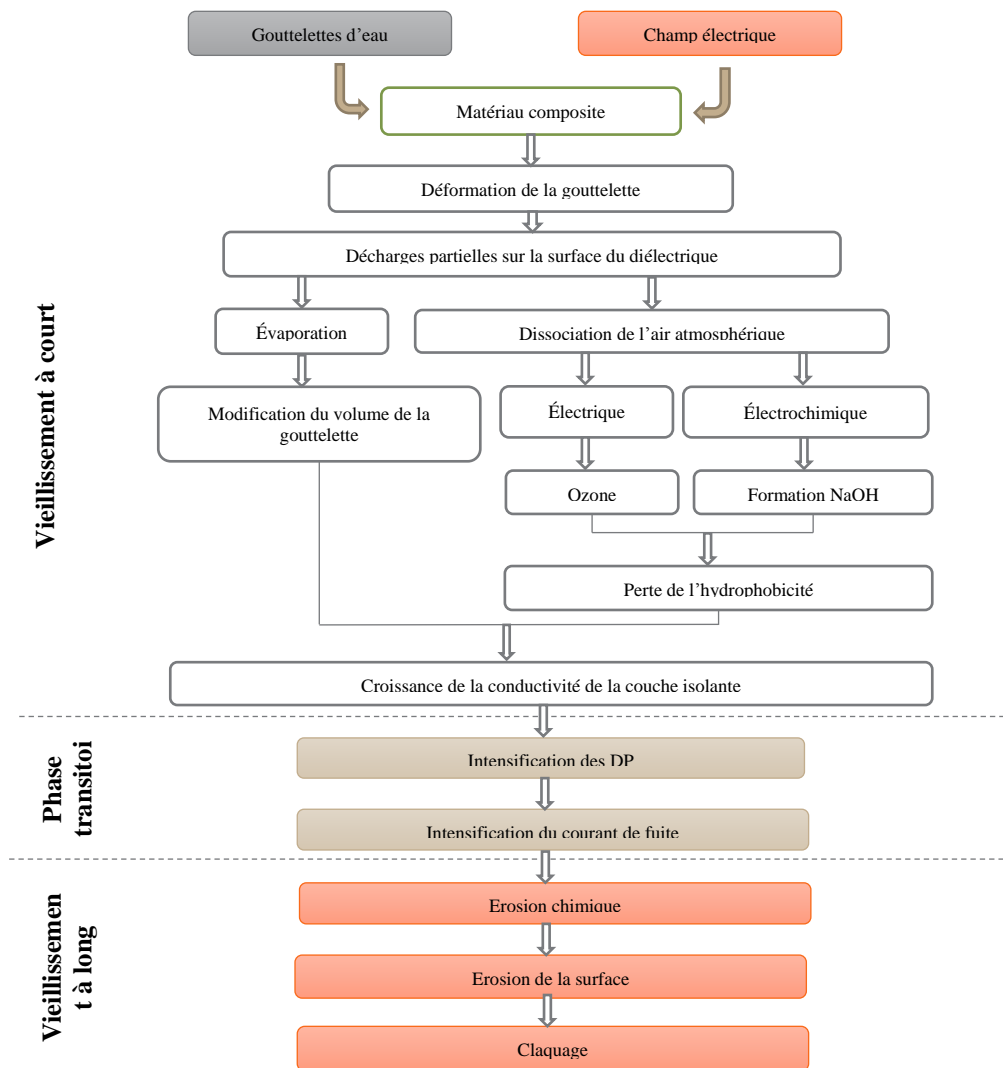


Figure 5: Processus de vieillissement des surfaces composites [38].

Aussi, comme décrit dans la Figure 5, la combinaison des contraintes environnementales et électriques à laquelle est soumis un système d'isolement constitue une cause prédominante de la défaillance des isolateurs. D'après la littérature [16, 39] ce processus passe par plusieurs étapes. Il commence par l'accumulation de gouttelettes d'eau sur la surface du revêtement de l'isolateur. Il s'en suit la dégradation des propriétés du matériau isolant à cause du passage du courant sur sa surface. Cette dégradation, en termes de perte de l'hydrophobicité et d'érosion, favorise la formation des décharges partielles et ainsi le contournement de l'isolateur.

L'effet couronne est également un facteur favorisant la détérioration de l'isolateur suite à la formation du  $\text{HNO}_3$ . Ce dernier a pour effet de dissoudre le polymère [16].

Le vieillissement électrochimique intervient dans la dégradation des systèmes d'isolement. Ce type de processus a lieu particulièrement sous l'action de tensions continues prolongées. Le caractère électrolytique du courant de fuite provoque un transfert d'ions qui peuvent être métalliques ou non. Ces derniers se déchargent au niveau des électrodes et sont susceptibles de former des substances actives se combinant avec le diélectrique. Les ions métalliques peuvent créer des chemins conducteurs appelés « dendrites » au sein du diélectrique [38]. L'augmentation de la température suite au processus électrochimique a pour effet d'engendrer une augmentation de la conductivité du matériau ainsi que l'activation de certaines réactions chimiques causant une dégradation supplémentaire du matériau.

#### **I.4.4. VIEILLISSEMENT MECANIQUE**

Plusieurs recherches ont indiqué que l'accumulation de neige et de glace sur les lignes électriques engendre la formation de microfissures au sein de l'isolateur. Celles-ci favorisent le phénomène de cheminement électrique (Electrical Tracking). Ce dernier consiste en une détérioration irréversible du matériau suite à une formation de décharges causant un chemin conducteur même à l'état sec [40, 41].

D'autres études [42] ont montré que la distribution du champ électrique se trouve affectée par l'effet combiné du vent et de la pluie. Ceci a pour conséquence de favoriser la formation de décharges et le contournement de l'isolateur.

### **I.5. METHODES DE SUIVI DU VIEILLISSEMENT DES ISOLATEURS COMPOSITES**

Le vieillissement d'un isolateur composite est régi par des phénomènes physiques liés qui touchent le matériau du revêtement en ayant un impact sur les performances globales de l'isolateur. Les techniques d'analyse de ces phénomènes sont divisées en deux catégories ;

- Les outils non invasifs sont, dans certains cas, appliqués à un système en service [43]. Ces techniques se font sur site et ne nécessitent pas le démontage de l'équipement pour qu'il soit analysé. Différentes techniques ont été élaborées. Pour pouvoir établir une corrélation fiable entre les paramètres mesurés et le vieillissement de l'isolateur, le groupe de travail

22.03 de la CIGRE a établi que ce type de diagnostic nécessite de faire appel à, au moins, deux techniques [44, 45].

- Les techniques destructives sont, quant à elles, appliquées seulement en laboratoire.

Tel que schématisé dans la Figure 6, une méthodologie pyramidale d'étude est suivie pour l'évaluation du vieillissement d'un système d'isolement. Dans notre cas, trois étages composent notre pyramide d'essais; le système, l'équipement et le matériau. Il est à noter que l'essai sur le système consiste à tester l'ensemble de la ligne ou le réseau. Les essais sur l'équipement et le matériau incluent, quant à eux, des tests sur leurs propriétés physicochimiques, mécaniques et électriques [32].

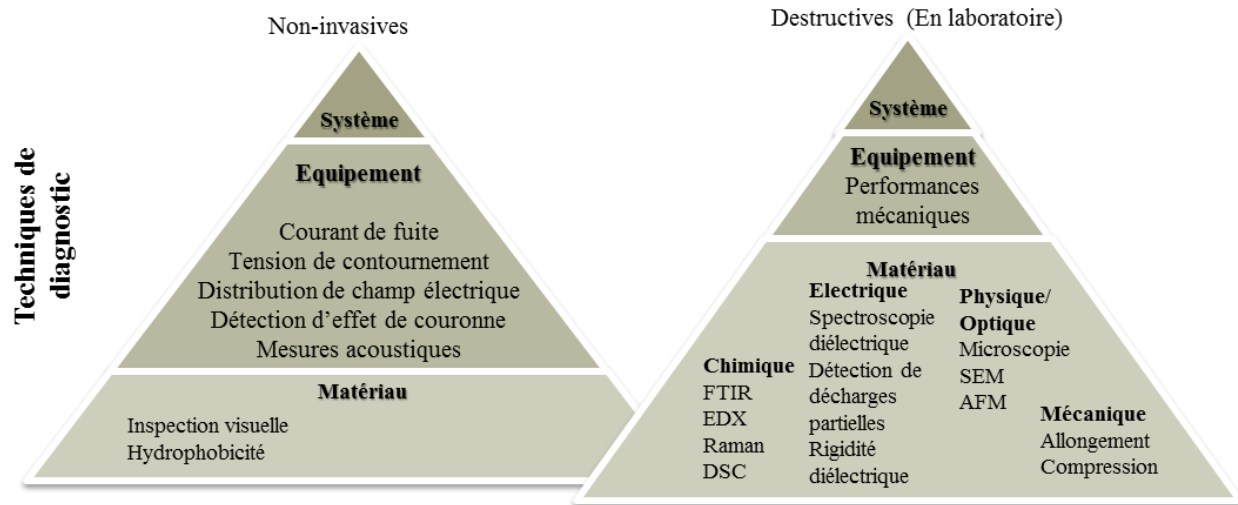


Figure 6: Méthodes de caractérisation du vieillissement [32].

Ainsi, quatre catégories de techniques de caractérisation peuvent être définies pour l'évaluation de l'état des isolateurs : L'analyse chimique, l'analyse électrique, l'analyse physique et optique ainsi que l'analyse mécanique. L'analyse électrique est la plus utilisée dans le domaine des matériaux haute tension, néanmoins elle reste peu couplée à des outils physico-chimique ou optique à cause de la difficulté de mise en œuvre ainsi que le prix et l'encombrement important de ces derniers [38]. Toutes ces techniques permettent de caractériser le matériau étudié à différentes échelles structurales.

## I.6. METHODES DE VIEILLISSEMENT DES ISOLATEURS COMPOSITES

Le vieillissement consiste à appliquer à un isolateur des contraintes qu'il est censé rencontrer dans un environnement de service réel dans le but d'évaluer ses propriétés après un certain temps. Ce temps peut être long ou court, ce qui définit le vieillissement à long terme ou à court terme.

Différentes méthodes de vieillissement existent. Elles peuvent être naturelles consistant à exposer l'isolateur à un environnement extérieur pendant une certaine période de temps pendant laquelle les propriétés de l'équipement sont évaluées. D'autres méthodes, dites artificielles, peuvent être appliquées aux isolateurs qui sont sujets à un environnement simulé dans une enceinte prévue à cet effet.

### **I.6.1. VIEILLISSEMENT NATUREL**

Plusieurs études ont été établies en se basant sur un vieillissement naturel des objets d'essais. Certaines d'entre elles consistaient à élaborer des stations d'essais dans lesquelles les isolateurs sont soumis à la tension d'exploitation en étant exposé aux conditions environnementales de la zone géographique où l'équipement est censé être installé [46, 47]. Ce type de démarche a montré que certains standards définissant les critères d'acceptation des isolateurs composites ne sont pas applicables pour tous les environnements d'exploitation.

D'autres études ont analysé des isolateurs exploités en conditions réelles pendant un certain nombre d'années afin de connaître au mieux le comportement de l'équipement le long de sa durée de vie [48, 49]. Cette dernière a pu être extrapolée grâce à des algorithmes dédiés et certaines méthodes statistiques [50, 51].

### **I.6.2. VIEILLISSEMENT ARTIFICIEL**

Ce type de vieillissement peut être non accéléré consistant à recréer les conditions d'exploitation en laboratoire afin de mieux les contrôler et ainsi pour faciliter les mesures requises pour l'évaluation de l'isolateur. Elles procurent l'avantage de ne pas dépendre des cycles naturels et des variations saisonnières. Ce type de méthode requière un temps important de mobilisation des moyens. Il n'est donc pas recommandé pour l'évaluation du comportement à long terme d'un équipement.

D'autres méthodes de vieillissement dites accélérées sont apparues afin de réduire le temps de vieillissement. Elles se font sur le même modèle des méthodes non accélérées en appliquant des contraintes plus élevées que celles qui sont susceptibles d'être rencontrées en conditions naturelles tout en veillant à ce qu'elles ne soient pas trop importantes pouvant dénaturer le mécanisme de vieillissement en question. Plusieurs procédures ont été élaborées par divers auteurs et organismes afin de simuler au mieux les contraintes auxquelles sont soumis les systèmes d'isolement étudiés à travers leur exploitation. Des organismes internationaux tels qu'IEEE, CEI, ANSI, ISO, ASTM ou NEMA ont publié des standards relatifs aux procédures de vieillissement accéléré qui peuvent être trouvés dans [52-57].

Il a été montré par Perrot [58] qu'il existe une bonne corrélation entre le vieillissement naturel des isolateurs et celui réalisé selon le standard CEI. Dans d'autres travaux, Riquel [59] a montré que le vieillissement accéléré engendre des effets similaires lors d'une exposition à des facteurs naturels. Il a introduit le concept de ratio d'accélération qui est défini par le rapport du temps de test sur le temps équivalent de vieillissement.

Parmi les méthodes de vieillissement accéléré, nous pouvons citer:

#### **I.6.2.1. TEST DE RESISTANCE A L'ACIDITE**

Lors de ce test des échantillons sont soumis à des solutions acides (acide sulfurique, acide nitrique). Tout changement physico-chimique est surveillé durant ce test [16].

### I.6.2.2. TEST DE L'HYDROLYSE

L'hydrolyse est mesurée par l'exposition de l'échantillon à une eau bouillante. La surface du matériau sera ainsi surveillée par l'utilisation de spectroscopie à rayons infrarouges afin de mesurer tout changement physico-chimique [16].

### I.6.2.3. VIEILLISSEMENT AUX RAYONS ULTRAVIOLETS

Des enceintes de vieillissement équipées de sources artificielles de rayons ultraviolets telles que les lampes xénon, fluorescentes ou lampes aux halogénures métalliques sont généralement utilisées pour le vieillissement accéléré [60]. L'exposition à la condensation, l'humidité relative ainsi que la température sont contrôlées par ces bancs afin de mettre en place les conditions de vieillissement souhaitées.

Deux types de lampes avec des caractéristiques spectrales différentes peuvent être utilisés. Les lampes UV-B avec une irradiance maximale à 313 nm ont leur énergie concentrée entre 280nm et 360 nm. Ce type de lampes ne procure pas une bonne corrélation avec le vieillissement naturel car il a été constaté que les mécanismes de vieillissement suite à l'exposition à ce type de lampes sont différents de ceux observés dans les conditions réelles. L'autre type de lampes est appelé UV-A, il a un pic autour de 340nm. Comme indiqué dans la Figure 7, ce type de lampe peut simuler des rayonnements solaires directs avec une irradiation maximale de  $1,55\text{W/m}^2$  [61].

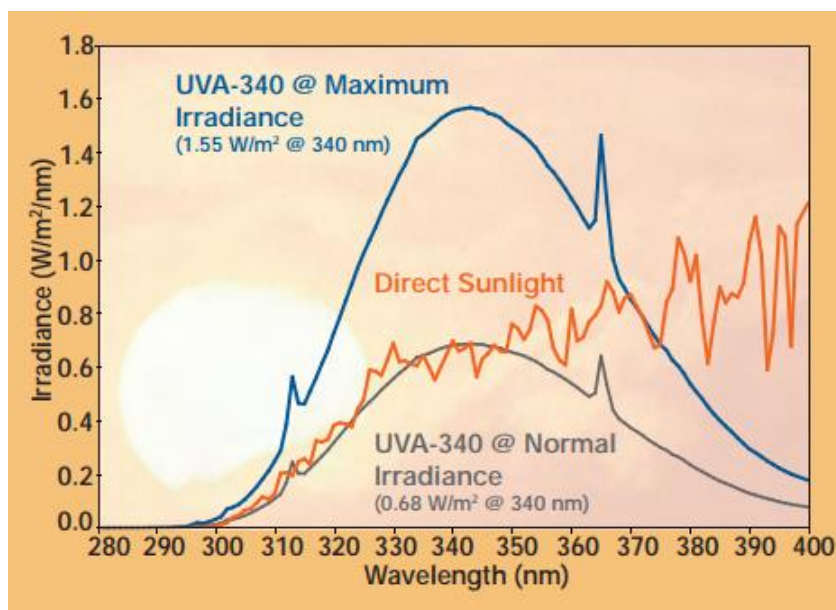


Figure 7: Comparaison du spectre de rayonnement artificiel par lampe fluorescentes UVA et celui du rayonnement solaire [61].

D'après la littérature [62-64], 200h de test sont équivalents à une année de service dans des conditions normales d'exploitation en considérant que la cause principale du vieillissement est la radiation UV. Néanmoins, la zone géographique dans laquelle est censé être utilisé l'isolateur doit être pris en compte dans le calcul de cette équivalence.

#### **I.6.2.4. TEST DE RESISTANCE A L'OZONE**

Etant donné que l'ozone engendre la formation d'acide nitrique endommageant la surface de l'isolateur, un test de résistance à l'ozone est nécessaire pour évaluer les performances du matériau. Pour ce faire, les échantillons sont placés dans une soude scellée connectée à un générateur d'ozone afin d'assurer une concentration de gaz suffisante. Les changements physico-chimiques du matériau sont ainsi surveillés [16].

#### **I.6.2.5. VIEILLISSEMENT THERMIQUE**

Ce test est effectué en installant les échantillons dans un four Thermo-régulé (Isotherme dans certains cas). L'évolution des caractéristiques physico-chimiques est surveillée le long du test [59].

La norme CEI 216 [65] est un guide pour la détermination des propriétés et pour la préparation des procédures d'essai d'endurance thermique des matériaux isolants électriques. Une autre méthode dite processus de vieillissement égalisé «The equalized ageing process method (EAP) » publiée dans la référence [66] est appliquée pour étudier l'endurance thermique des isolants solides.

Ces méthodes ont l'inconvénient de nécessiter un temps relativement important de l'ordre de quelques milliers d'heures. Dans un souci d'économie de temps, certains chercheurs se sont penchés sur des méthodes de vieillissement très accéléré (VTA) réduisant le temps à 500h [67].

#### **I.6.2.6. VIEILLISSEMENT EN CHAMBRES CLIMATIQUES A CONTRAINTES MULTIPLES**

Plusieurs travaux [68-71] ont été établis afin d'étudier les effets couplés de plusieurs contraintes sur le comportement des isolateurs composites. Des chambres climatiques sont, ainsi, mises en place afin de simuler les différentes contraintes environnementales en termes de champ électrique, de rayonnement ultraviolet, de température, de pollution, etc.

### **I.7. CONCLUSION**

Il a été possible de constater au cours de ce chapitre que les isolateurs composites font l'objet de divers ouvrages et publications. Cet intérêt est suscité par les bonnes performances mécaniques et électriques de ce type d'équipements. La résistance aux aléas environnementaux demeure néanmoins une préoccupation majeure des opérateurs qui font appel à cette technologie.

Plusieurs méthodes de diagnostic ont été ainsi proposées afin d'évaluer l'état de l'isolateur. Le diagnostic peut être effectué en laboratoire ou sur site.

L'étude du comportement des isolateurs à travers le temps par rapport aux contraintes environnementales est un sujet important faisant l'objet de divers travaux. Des études expérimentales ont ainsi été réalisées afin de comprendre les mécanismes responsables de la

détérioration des caractéristiques électriques, mécaniques et physico-chimiques des isolateurs. La durée de vie de ces derniers peut être ainsi estimée.



# Chapitre II

## **MATÉRIAU ET TECHNIQUES EXPÉRIMENTALES**

---

Dans le cadre de ce chapitre nous présenterons le matériau faisant l'objet de notre étude. Ensuite, nous détaillerons les conditions de vieillissements accélérés (thermique et photochimiques) auxquelles les échantillons ont été soumis. Enfin, nous nous attacherons à décrire les différentes techniques de caractérisation utilisées dans nos travaux.

## II.1. MATERIAU DE L'ETUDE ET PREPARATION

### II.1.1. PRESENTATION DU MATERIAU

Dans le cadre de notre étude nous nous intéressons au vieillissement des isolateurs composites ayant un revêtement en Ethylène-Propylène-Diène -Monomère (EPDM). Ce type de matériau fait partie de la famille des élastomères [20]. Ces derniers sont caractérisés par des propriétés spécifiques qui peuvent être listées comme suit :

- Une faible température de transition vitreuse
- Une élasticité caoutchouteuse à température ambiante
- Une structure amorphe ou faiblement cristalline
- Un réseau tridimensionnel permettant au matériau de conserver ses propriétés dimensionnelles.

L'EPDM (Figure 8) est le résultat de la copolymérisation de trois monomères : l'éthylène, le propylène et un diène (monomère insaturé non conjugué). Différents paramètres peuvent déterminer le type de la molécule parmi lesquels nous pouvons citer :

- La fraction molaire ou massique des différents monomères constitutifs
- La masse molaire
- Les conditions de mise en œuvre (Température et durée de réticulation ainsi que le conditionnement)
- La nature du monomère diène. Nous pouvons citer le 5-vinylidène-2-norbornène (VNB), le dicyclo-pentadiène (DCPD) et le 5-éthylidène-2-norbornène (ENB)

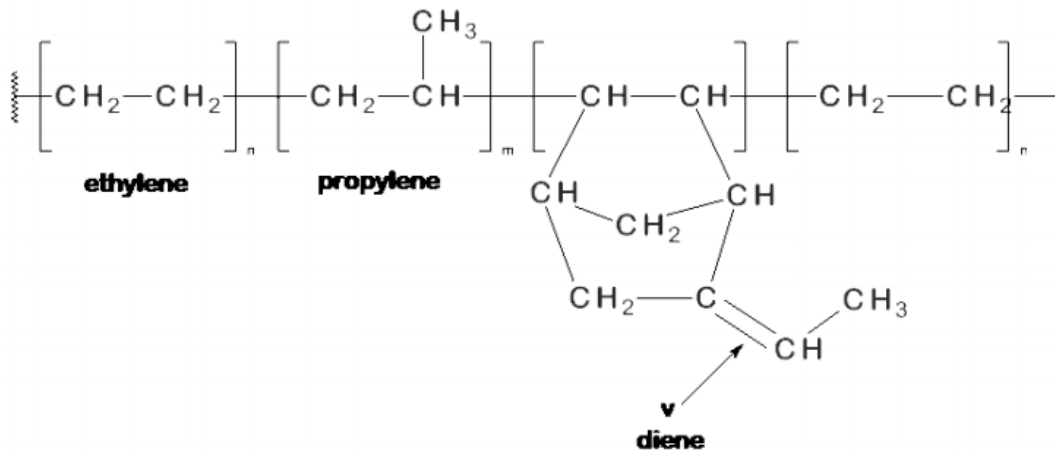


Figure 8: Structure chimique du monomère d'EPDM de type ENB [72].

De manière générale, la préparation de l'EPDM passe par les étapes suivantes :

- 1) La polymérisation des monomers

2) La formulation

Elle est définie par l'ajout des différents ingrédients constituant le matériau. Ces derniers confèrent à l'élastomère des caractéristiques bien définies :

○ Les charges:

Elles confèrent un grand nombre de caractéristiques. Elles peuvent être classées comme suit [26]:

- Charges renforçantes : procurent une résistance au déchirement et à la rupture ainsi qu'une dureté des produits vulcanisés ;
- Charges non renforçantes : elles sont utilisées pour améliorer le prix de revient du matériau.

Le choix approprié du type de charges ainsi que leur dosage est très important car ces charges peuvent compromettre les propriétés électriques [8]. Parmi les charges utilisées en industrie nous pouvons citer le noir de carbone, l'acide silicique et des silicates dont le silicate d'aluminium et le silicate de calcium [6].

○ Les plastifiants:

Ils permettent une augmentation de la mobilité des chaînes macromoléculaires et facilitent l'incorporation des différents ingrédients de la formulation et leur dispersion. Ils peuvent être à base d'huile minérale, de produit d'origine animale ou de synthèse. Ils sont utilisés pour augmenter la mobilité des chaînes macromoléculaires et facilitent, ainsi, la mise en œuvre des mélanges. Ils permettent, également, de moduler les propriétés mécaniques finales de l'élastomère après vulcanisation [73, 74].

○ Les agents de vulcanisation:

Le nom de « vulcanisation » (provenant du mot 'Vulcain', dieu romain du feu) a été donné aux processus de réticulation du caoutchouc en référence au procédé de réticulation par le soufre [26]. Il s'agit d'un ensemble d'agents chimiques dont le rôle est de favoriser la formation des liaisons chimiques inter- et intra-chaînes [20]. En fonction de son application, le type de vulcanisation peut être au soufre ou par peroxyde.

○ Les stabilisants:

Ce sont des composants utilisés pour protéger le matériau contre l'oxygène, l'ozone et les radiations UV. En raison de leur faible solubilité dans la matrice polymère, Ils sont utilisés en faible quantité.

○ Les composants spécifiques:

Ce type d'additifs permet d'assurer certaines propriétés spécifiques telles que des ignifugeants, des agents gonflants, des agents desséchants, des pigments, etc.

3) Le mélangeage

4) La vulcanisation de la matrice élastomérique

Elle consiste à lier les chaînes moléculaires par des liaisons radiales et à les transformer en un réseau tridimensionnel [75].

Ainsi, le matériau faisant l'objet de notre étude est un EPDM industriel utilisé par l'entreprise SEDIVER pour la fabrication de ses isolateurs à haute tension. La formulation du matériau est détaillée dans le Tableau 2 ci-dessous :

**Tableau 2: Composition de l'EPDM industriel utilisé dans cette étude**

Composition	Quantité (parts)
EPDM (ethylidene norbornene)	100
Trihydrate d'Alumine (ATH)	240
Plastifiant	40
Anti-oxydant	5
Peroxyde de dicumyle,	6

### II.1.2. PREPARATION DES ECHANTILLONS

Afin de réaliser les caractérisations escomptées, le matériau a été conditionné par le fabricant en plaques de 20cm de diamètre et de 2mm d'épaisseur. Elles ont été découpées en laboratoire en échantillons de forme circulaire d'un diamètre de 80mm pour la mesure des propriétés diélectriques et physico-chimiques. Des échantillons en formes d'haltères ont été, également, préparés pour les essais mécaniques conformément à la norme CEI 60811. Ces échantillons ont été découpés à l'aide d'une presse avec un outil de découpe sous forme d'haltères.

## II.2. CONDITIONS DE VIEILLISSEMENT ACCELERE

Le vieillissement des matériaux dans leurs conditions réelles d'utilisation est caractérisé par des cinétiques de dégradation lentes [76]. L'accélération du vieillissement devient, ainsi, une nécessité pour une évaluation qualitative et quantitative des mécanismes de dégradation en laboratoire.

### II.2.1. VIEILLISSEMENT THERMIQUE ACCELERE

Le vieillissement thermique accéléré de l'EPDM industriel étudié a été mené conformément à la norme CEI 60216 [65]. A cet effet, une étuve isotherme à air ventilé a été utilisée assurant une variation de température inférieure à  $\pm 2^\circ\text{C}$ . Les températures de vieillissement choisies sont 100, 120 et  $140^\circ\text{C}$ .

**Tableau 3: Résumé du protocole de vieillissement thermique**

Température de vieillissement	Prélèvement	Nombre d'échantillons
$100 \pm 2^\circ\text{C}$	Chaque 1000 h jusqu'à 6000 h	$3 \times 6 = 15$
$120 \pm 2^\circ\text{C}$	Chaque 700 h jusqu'à 3500 h	$3 \times 5 = 15$
$140 \pm 2^\circ\text{C}$	Chaque 420 h jusqu'à 2100 h	$3 \times 5 = 15$

Conformément à la norme appliquée, un minimum de 5 prélèvements a été effectué pour chaque température de vieillissement afin de pouvoir tracer les tendances de variation des propriétés du matériau. Etant donné que ce dernier arrive à dégradation plus rapidement pour les températures de vieillissement les plus élevées, l'intervalle entre deux prélèvements successifs diffère en fonction de la température appliquée. Le résumé de la mise en œuvre du vieillissement thermique des échantillons est détaillé dans le Tableau 3. Pour chaque prélèvement relatif à une température de vieillissement donnée, trois échantillons ont été retirés.

### II.2.2. VIEILLISSEMENT PHOTOCHEMIQUE ACCELERE

Le rayonnement UV représente la source principale de dégradation lors de l'exposition aux radiations solaires naturelles. A cet effet, nous avons soumis, dans le cadre de cette étude, les échantillons étudiés à un vieillissement dans une enceinte de vieillissement sous rayonnement ultraviolet à température contrôlée conformément à la norme ASTM G154 [57] pour la simulation du rayonnement solaire direct.

Ladite enceinte est équipée de lampes UVA 340nm avec une irradiance de 0.89W/m<sup>2</sup>/nm. La température a été maintenue à 45°C durant toute la période du vieillissement. Aucune condensation n'a été considérée au cours de l'essai de vieillissement.

Les échantillons ont été soumis à un vieillissement jusqu'à 2160 heures avec des prélèvements toutes les 432 heures. Le choix de la durée totale du vieillissement a été fait sur la base des données disponibles dans la littérature où 200 heures de vieillissement artificiel sont équivalentes à une année d'exploitation en conditions naturelles [62-64]. Ainsi, le vieillissement artificiel qui a été appliqué correspond à une durée de vieillissement de 11 ans dans des conditions naturelles. Le protocole de vieillissement est résumé dans le Tableau 4 ci-dessous :

**Tableau 4: Résumé du protocole de vieillissement photochimique**

Conditions de vieillissement	Prélèvement	Nombre d'échantillons
340nm, 0.89W/m <sup>2</sup> /nm à 45°C	Chaque 432 h jusqu'à 2160 h	3x5=15

### II.3. TECHNIQUES DE CARACTERISATION MULTI-ECHELLES DU VIEILLISSEMENT

Le suivi du vieillissement d'un matériau se fait par l'évaluation d'indicateurs jugés représentatifs du phénomène de dégradation. Or, les indicateurs représentatifs du vieillissement n'offrent pas nécessairement aux mêmes échelles de la matière que les propriétés d'usage du matériau. Une transition d'échelle est, alors, opérée par la corrélation des différentes grandeurs entre elles afin de remonter depuis l'échelle des mécanismes de dégradation jusqu'aux propriétés exploitables [76].

Dans le cadre de notre étude, nous avons appliqué plusieurs méthodes de caractérisation du vieillissement du matériau isolant à différentes échelles de la matière afin de cerner au mieux les différentes corrélations qui peuvent apparaître en fonction du type de contraintes appliquées.

### **II.3.1. ECHELLE MOLECULAIRE**

Les analyses à l'échelle moléculaire sont utilisées pour vérifier la composition du matériau et détecter la présence de nouveaux constituants qui n'en faisaient pas partie avant sa mise en service.

#### **II.3.1.1. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE A TRANSFORMEE DE FOURIER ATR**

La technique d'analyse FTIR (Fourier Transform Infra Red) est une technique de caractérisation qui a l'avantage d'être, dans certains cas, non destructive. Elle représente la principale méthode utilisée pour déterminer la composition ainsi que la concentration des liaisons interatomiques présentes au sein d'un polymère. Ces liaisons chimiques peuvent être déterminées à partir de la détection de leurs modes de vibrations caractéristiques. Ainsi, cette méthode peut être utilisée pour identifier un adjuvant de composition inconnue dans une matrice polymère, ou suivre la cinétique de dégradation chimique (disparition et apparition de groupements chimiques) d'un matériau polymère [20].

La spectrométrie infrarouge consiste à irradier un échantillon par un faisceau infrarouge polychromatique. Ledit échantillon subit des vibrations moléculaires et absorbe une partie de l'énergie incidente. En faisant appel à la transformée de Fourier, un spectre infrarouge ( $400-4000\text{ cm}^{-1}$ ) présentant des bandes d'absorption dont les fréquences sont caractéristiques de la nature chimique du composé est obtenu. L'identification de ces bandes permet de reconstituer la structure chimique du produit [20].

Un spectre infrarouge consiste à présenter la proportion de lumière transmise ou réfléchi par l'échantillon en fonction du nombre d'onde. Ce dernier correspond à l'inverse de la longueur d'onde.

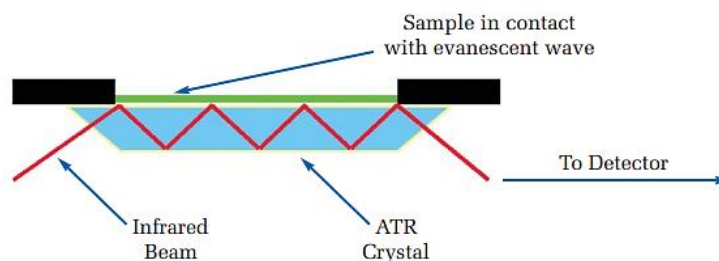
En fonction de la nature (épaisseur et transparence) de l'échantillon analysé, deux modes d'obtention des spectres sont possibles :

- En transmission pour des échantillons fins (quelques dizaines à quelques centaines de micromètres d'épaisseur).
- En réflexion (ATR pour Réflexion Totale Atténuée) pour des échantillons opaques, trop absorbants ou épais.

Dans le cadre de notre étude la méthode FTIR a été utilisée en mode réflexion totale atténuée (ATR) en raison de l'opacité des échantillons analysés (2mm d'épaisseur) qui ne permet pas une analyse en transmission. Ce type de technique ne nécessite pas une préparation spécifique. L'analyse est, donc, rapide et non destructive. L'échantillon est en contact direct avec un cristal. Un faisceau IR est dirigé vers le cristal qui a un indice de réfraction relativement élevé. Le faisceau infrarouge réfléchi à partir de la surface interne du cristal crée une onde évanescente. Une partie de l'énergie de cette onde est absorbée par l'échantillon, la partie réfléchi est renvoyée

au détecteur. La Figure 9 montre le principe de fonctionnement du système ATR à réflexion multiple [77].

Le mode ATR permet de sonder le matériau sur une épaisseur de 2 à 5  $\mu\text{m}$  en fonction du cristal utilisé (Diamant ou germanium) [78]. L'équipement utilisé dans nos travaux est un FTIR IFS66v/s de chez Bruker à cristal de diamant. 32 scans ont été réalisés pour chaque échantillon avec une résolution de  $4\text{cm}^{-1}$ .



**Figure 9: Représentation graphique d'un système ATR à réflexion multiple.**

La structure chimique du polymère étudié est illustrée dans la Figure 8. Sa formulation est donnée dans le Tableau 2. Les principales bandes caractéristiques de ce matériau sont rapportées dans le Tableau 5.

Il est à noter que la spectroscopie FTIR nous permet d'évaluer l'indice carbonyle (IC) qui représente le ratio de l'intensité d'absorption du carbonyle à  $1735\text{cm}^{-1}$  sur l'intensité d'absorption du méthylène à  $2850\text{cm}^{-1}$  [79].

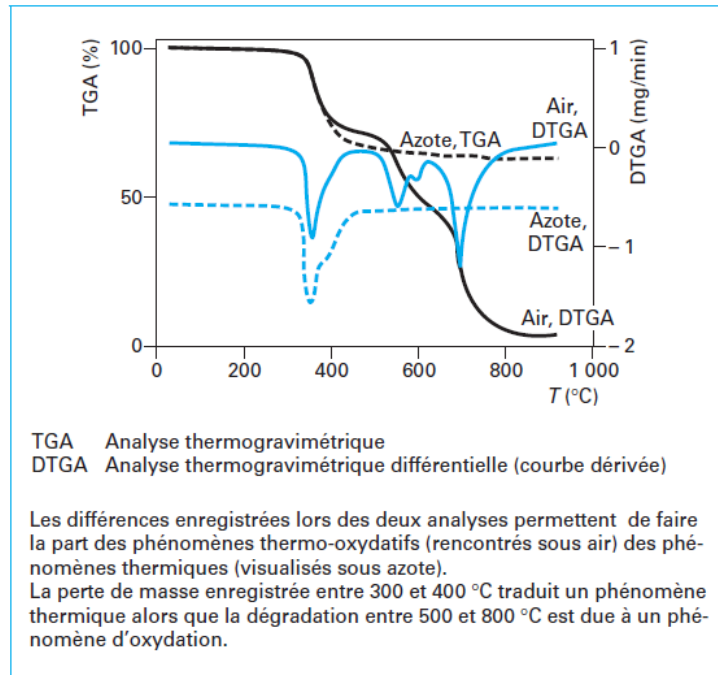
**Tableau 5: Attribution des principales bandes caractéristiques de l'EPDM [4, 49, 80-83]**

Nombre d'onde ( $\text{cm}^{-1}$ )	Attribution
3615, 3524, 3432, 3375	$\text{Al}(\text{OH})_3$
1465, 1376, 2915, 2955	$\text{CH}_3$ (Méthyle)
2850	$\text{CH}_2$ (Méthylène)
1259, 970	CH
1016, 791, 728, 665	Al-O
1750-1720	$>\text{C}=\text{O}$ (Carbonyle)
3370-3620	OH

### II.3.1.2. L'ANALYSE THERMOGRAVIMETRIQUE

L'analyse thermogravimétrique (ATG) est d'un apport non négligeable pour l'évaluation de la résistance thermique des matériaux ainsi que l'identification de leur cinétique d'oxydation à haute température. Le principe de l'ATG consiste à mesurer en continu, à l'aide d'une microbalance, les variations de masse d'un échantillon solide en fonction du temps à une température donnée lors de sa transformation physico-chimique [20]. Dans la plupart des cas un traitement thermique

en condition dynamique (rampe de température) est appliqué à l'échantillon tel qu'illustré dans la Figure 10.



**Figure 10: Analyse thermogravimétrique sous air et sous azote.**

Afin de permettre une meilleure interprétation des courbes de variation de masse, il est nécessaire d'y réaliser certains traitements [84]. Le calcul de la dérivée (DTGA) de la masse par rapport à la température, tel qu'illustré dans la Figure 10, permet de définir précisément le domaine de température dans lequel la perte de masse se produit. Une comparaison des performances de différents échantillons peut être effectuée avec cette méthode.

Dans le cadre de notre étude, l'appareil utilisé pour l'analyse thermogravimétrique est un Q50 de TA Instrument. Des échantillons d'environ 10mg ont été soumis à une rampe chauffée de 10°C/min allant de 25 à 800°C sous un flux constant d'azote afin d'évacuer tout gaz corrosif pouvant être formé durant la dégradation et d'éviter, ainsi, de possibles phénomènes thermo-oxydatifs.

## II.3.2. ECHELLE MICROSTRUCTURALE

### II.3.2.1. LA CALORIMETRIE DIFFERENTIELLE A BALAYAGE

DSC pour « Differential Scanning Calorimetry », est une technique d'analyse thermique. La DSC est largement utilisée en milieu industriel en contrôle qualité, en raison de son applicabilité dans l'évaluation de la pureté d'échantillons ou dans l'étude du durcissement des polymères [85].

Son principe de fonctionnement est basé sur la mesure en dynamique (rampe de température) des échanges de chaleur entre un creuset de référence vide et un creuset contenant quelques milligrammes de l'échantillon analysé [20] (Figure 11).



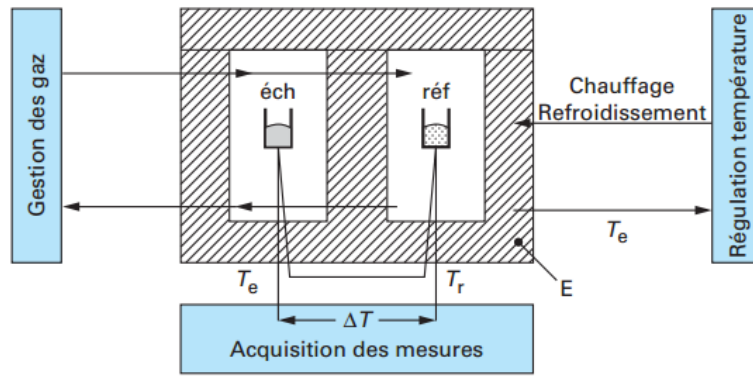


Figure 11: Montage d'un appareillage d'analyse calorimétrique différentielle [85].

A travers le thermogramme DSC relatif à la technique de transition de phase, il est possible de détecter la température de cristallisation ( $T_c$ ) d'un polymère caractérisé par les processus exothermiques ou sa température de fusion ( $T_m$ ) définie, quant à elle, par les processus endothermiques comme illustré dans la Figure 12. Il est également possible de déterminer la température de transition vitreuse ( $T_g$ ) des polymères étudiés. Ces derniers sont le plus souvent amorphes. Néanmoins, ils peuvent contenir un faible taux de cristallinité qui peut être déduit grâce à la calorimétrie différentielle à balayage (DSC).

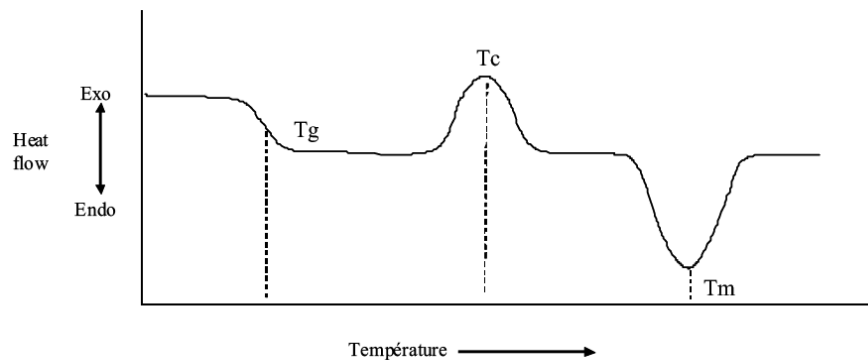


Figure 12: Transitions d'un polymère déterminées par DSC.  $T_g$ , transition vitreuse ;  $T_c$ , cristallisation ;  $T_m$ , fusion [78].

Dans le cadre de notre étude, nous avons utilisé l'appareil Q2000 de TA Instrument. Des échantillons d'environ 10 mg ont été analysés par un cycle de chauffage et de refroidissement à une vitesse constante de  $5^\circ/\text{min}$  sous atmosphère d'azote dans un intervalle de température de  $-90$  à  $140^\circ\text{C}$  pour le chauffage et de  $140^\circ\text{C}$  à  $-100^\circ\text{C}$  pour le refroidissement.

### II.3.2.2. MICROSCOPE ELECTRONIQUE A BALAYAGE

La microscopie électronique à balayage (MEB) est une méthode utilisée afin de collecter des informations sur la topographie de la surface de l'échantillon étudié. Sous l'impact du faisceau d'électrons primaires accélérés (de 10 à 30 kV) (Figure 13), des électrons rétrodiffusés et des électrons secondaires émis par l'échantillon sont recueillis sélectivement par des détecteurs qui

transmettent un signal à un écran cathodique dont le balayage est synchronisé avec le balayage de l'échantillon.

Dans le cadre de notre étude, un microscope électronique à balayage de type SU-8020 (Hitachi) a été utilisé avec une tension d'accélération de 5kV.

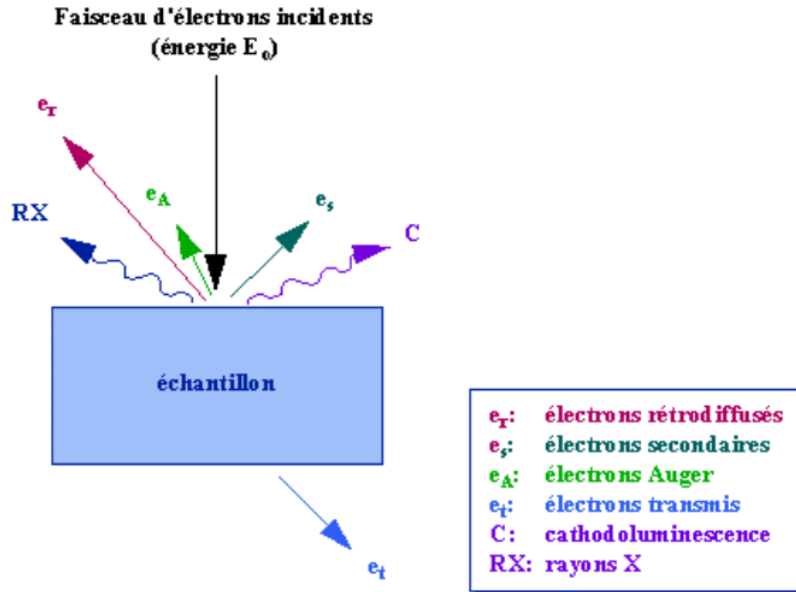


Figure 13: Représentation de l'interaction entre un faisceau d'électrons et la surface d'un échantillon [86].

### II.3.2.3. SPECTROSCOPIE A RAYONS X A DISPERSION D'ENERGIE

La spectroscopie à rayons X à dispersion d'énergie utilise le même dispositif que le MEB décrit plus haut. Cette méthode fait appel aux contrastes atomiques permettant l'analyse de la composition chimique du matériau dans le cas de la récupération des électrons rétrodiffusés (collision élastique) [20].

Dans le cadre de notre étude, l'appareil utilisé est le même qui a été utilisé pour la microscopie électronique à balayage. La tension d'accélération qui a été adoptée est de 10kV permettant un sondage sur une profondeur de 1 $\mu$ m.

## II.3.3. ECHELLE MACROSCOPIQUE

### II.3.3.1. L'ANALYSE THERMOMECHANIQUE DYNAMIQUE (DMA)

DMA pour Dynamic Mechanical (Thermal) Analysis. Cette méthode est destinée à l'étude et à la caractérisation des propriétés mécaniques de matériaux généralement viscoélastiques tels que les polymères. Elle permet de déterminer en particulier des grandeurs physiques intrinsèques telles que le facteur d'amortissement aussi appelé facteur de perte ( $\tan \delta_{\text{Mécanique}}$ ). Cette propriété est à différentier du facteur de perte diélectrique ( $\tan \delta_{\text{Diélectrique}}$ ).

Le principe de la méthode DMA consiste à appliquer à l'échantillon étudié une oscillation dynamique dans un large domaine de températures (typiquement de  $-150^{\circ}\text{C}$  à  $300^{\circ}\text{C}$  dans le cas d'une fréquence fixe) ou de fréquences (typiquement de  $10^{-2}$  à  $10^2$  Hz dans le cas d'une température fixe) afin de caractériser la relaxation à la transition vitreuse.

Différents types de sollicitations peuvent être appliqués à l'échantillon étudié dans le cadre de la caractérisation par DMA. Ils peuvent être par cisaillement entre plateaux parallèles, traction, torsion ou par torsion trois points avec simple ou double encastrement. Cette dernière a été appliquée dans le cadre de notre étude en utilisant un appareil Q800 de TA instruments. Les échantillons ( $35\text{mm} \times 12\text{mm} \times 2.3\text{mm}$ ) ont été testés sous une amplitude de déformation constante de  $10\mu\text{m}$  à une fréquence de 1Hz. La rampe de variation de la température était de  $3^{\circ}\text{C}/\text{min}$  allant de  $-100^{\circ}\text{C}$  à  $140^{\circ}\text{C}$ .

### II.3.3.2. ESSAIS MECANIQUES

#### II.3.3.2.1. ESSAIS MECANIQUES DE TRACTION A LA RUPTURE

La traction à la rupture est la méthode conventionnelle de mesure des propriétés mécaniques d'un matériau telles que le module de Young ou l'élongation à la rupture. Cette dernière représente un critère important caractérisant la durée de vie d'un polymère [87].

La traction à la rupture est un test destructif. Il est soumis, dans le cadre de notre étude, à la norme CEI 60811.1.1 concernant les dimensions des échantillons analysés qui ont été découpés en haltères tel qu'illustré dans la Figure 14. La vitesse transversale de traction est de  $50\text{mm}/\text{min}$  en utilisant une machine d'essai universelle Lloyd LR 10K.

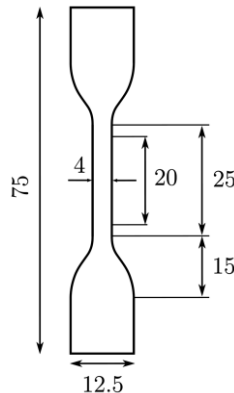


Figure 14: Dimensions en millimètres des haltères soumises aux essais mécaniques de traction.

#### II.3.3.2.2. ESSAI DE LA DURETE

La résistance d'un matériau à une déformation locale causée par une force extérieure de forme et de dimension données est mesurée à travers l'essai de dureté.

Il existe diverses techniques permettant de déterminer la dureté d'un matériau. Certaines techniques se basent sur la capacité d'amortissement d'un pendule, d'autres s'appuient sur la

résistance aux endommagements des matériaux, telles que la résistance à la rayure ou à la pénétration d'un indenteur dans le matériau (citons notamment la dureté Shore) [88].

Dans le cadre de notre étude, la technique « Shore A » a été utilisée pour la mesure de l'indice de dureté. Le duromètre utilisé est de type CEAST soumis à la norme ISO/R868. Neuf mesures ont été appliquées pour chaque prélèvement pour le calcul de la valeur moyenne de l'indice de dureté.

### II.3.3.3. MESURE DE L'HYDROPHOBICITE

En comparaison avec les isolateurs en céramique, ceux en matériaux polymères ont de meilleures caractéristiques en termes de poids, de rigidité électrique et de résistance aux contaminations polluantes de par l'hydrophobicité qui les caractérise. Cette dernière empêche le développement des bandes humides conductrices sur la surface de l'isolateur. La formation de décharges partielles se trouve ainsi empêchée provoquant une amélioration de la tenue de l'isolateur. De là, la détérioration de la surface de l'isolateur est un paramètre important à prendre en compte dans l'amélioration de la durée de vie des isolateurs composites. Une méthode d'évaluation de l'hydrophobicité du matériau est donc nécessaire dans l'étude du vieillissement des isolateurs.

La volonté de développer un outil d'évaluation de la capacité de la surface de l'isolateur à retenir les gouttelettes d'eau a abouti à l'apparition d'une méthode empirique de classification de l'hydrophobicité (HC method) (Figure 15) [89, 90]. L'inconvénient de cette méthode est qu'elle est qualitative et se basant sur le jugement de l'opérateur.

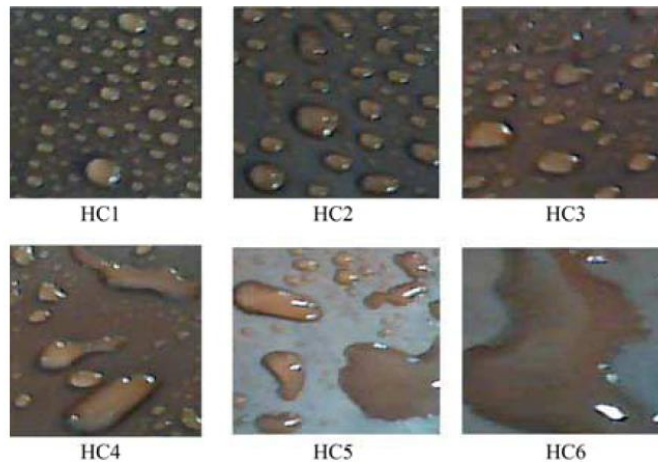


Figure 15: Niveaux d'hydrophobicité classifiés par la méthode HC [89].

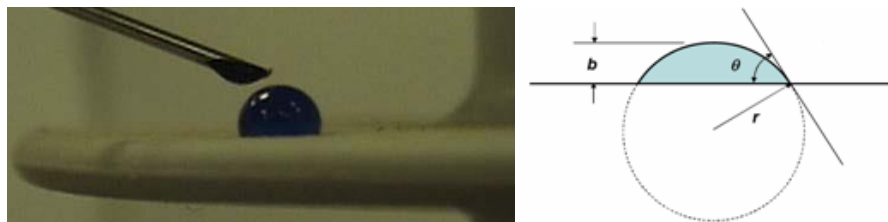


Figure 16: Calcul de l'angle de contact sur la surface d'un isolateur.

La mesure de l'angle de contact (Figure 16) est la méthode la plus répandue car elle permet d'évaluer l'hydrophobicité d'un matériau d'une manière objective et quantifiée.

Dans le cadre de notre étude nous avons opté pour la mesure de l'angle de contact en utilisant un goniomètre GDX digidrop. Des gouttelettes d'eau distillée de 3 à 5  $\mu\text{l}$  ont été déposées sur la surface de l'échantillon analysé, préalablement nettoyé à l'eau distillée puis séché à l'air comprimé, en utilisant une seringue revêtue en téflon. Grâce à l'analyse d'images numériques et à l'utilisation d'un logiciel spécial, l'angle de contact est mesuré. Les valeurs de l'angle de contact ont été obtenues à partir de la moyenne de trois à quatre mesures effectuées sur différentes gouttes placées à la surface.

#### II.3.3.4. ANALYSE DE LA COLORIMETRIE

Depuis l'antiquité, plusieurs systèmes de représentation des couleurs ont été élaborés allant du triangle de Helmholtz au cercle chromatique de Newton. Plus récemment, la Commission Internationale de l'Eclairage (CIE) a défini et normalisé un certain nombre d'espaces tridimensionnels de représentation des couleurs.

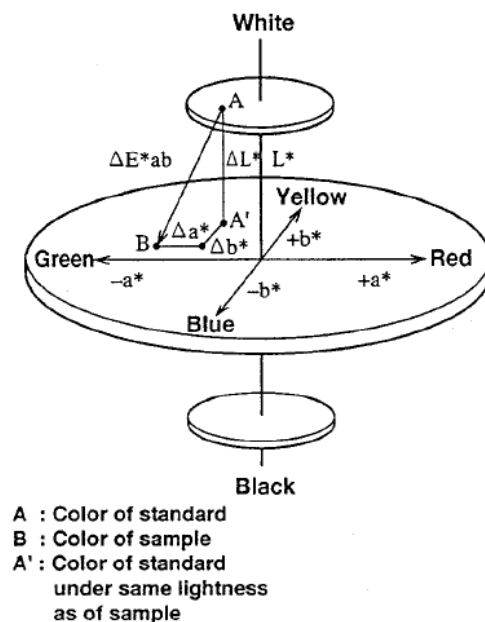


Figure 17: Espace orthonormé CIE- $L^*A^*b^*$  [91].

La colorimétrie cherche à rendre compte de façon synthétique non pas de la distribution spectrale d'une lumière colorée mais de la sensation physiologique générée par ce stimulus. Or les sensations visuelles colorées ne sont pas proportionnelles aux stimuli physiques [92].

A cet effet, afin de comparer deux couleurs perçues, il est nécessaire de déterminer un espace dans lequel la distance géométrique soit uniformément proportionnelle à la différence visuelle entre les couleurs correspondantes. L'espace CIE- $L^*a^*b^*$  est un espace uniforme permettant ce type de calcul d'écart colorimétrique. C'est l'espace choisi dans nos travaux pour travailler avec les mesures colorimétriques obtenues à l'aide du spectrophotomètre SpectroDens de TECHKON.

Cet appareil permet de décrire une couleur par un ensemble de trois coordonnées dans le repère orthonormé ( $L^*$ ,  $a^*$ ,  $b^*$ ) :  $L^*$  est l'axe de la luminosité, l'axe  $a^*$  décrit l'évolution du vert au rouge et l'axe  $b^*$  du bleu au jaune tel que le montre la Figure 17.

L'écart colorimétrique entre deux couleurs est calculé comme la distance euclidienne entre les points les représentant dans le repère, par la formule suivante :

$$\Delta E^*_{ab} = [(\Delta L^*)^2 + (\Delta a^*)^2 + (\Delta b^*)^2]^{1/2} \quad (1)$$

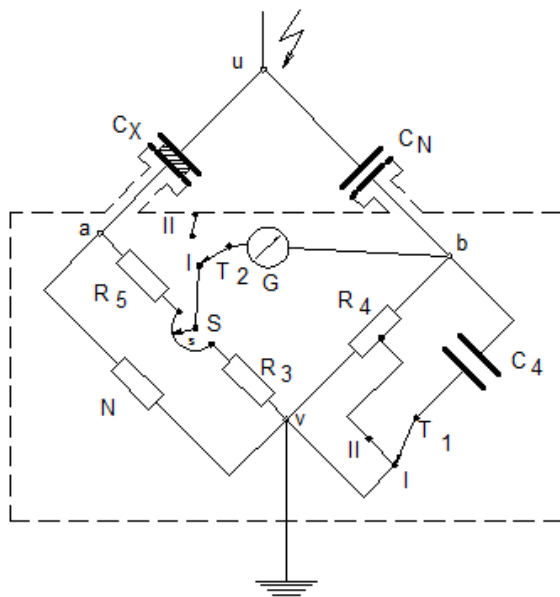
Avec  $\Delta E$  l'écart colorimétrique correspondant à la norme du vecteur reliant les deux points considérés,  $\Delta L^*$  la différence de clarté,  $\Delta a^*$  la différence dans les teintes vert /rouge et  $\Delta b^*$  la différence dans les teintes bleu /jaune.

### II.3.4. ANALYSE ELECTRIQUE

L'analyse électrique englobe une partie importante des méthodes d'évaluation des isolateurs. Ces méthodes peuvent être destructives ou non. Elles sont effectuées sur site ou en laboratoire en faisant appel à des installations adaptées. Dans le cadre de notre étude, nous nous sommes concentrés sur la caractérisation des propriétés diélectriques et électriques du revêtement de l'isolateur. Ces mesures ont été réalisées en laboratoire grâce à des dispositifs adaptés.

#### II.3.4.1. MESURE DE PROPRIETES DIELECTRIQUES

La permittivité relative ( $\epsilon_r$ ) et le facteur de pertes diélectriques ( $\tan \delta_{\text{Diélectrique}}$ ) du matériau étudié ont été mesurés grâce à un pont de Schering (TETTEX A.G ZURICH type 2904). Cet appareil est équipé d'un condensateur muni d'un anneau de garde permettant d'éliminer l'influence perturbatrice des capacités parasites sur le résultat de la mesure.



#### Légende :

- $C_N$  = Condensateur étalon
- $C_X$  = Condensateur à mesurer
- $R_3$  = 1. Décade de résistance  
2. Résistance fixe commutable
- $R_4$  = 1. Résistance fixe commutable  
2. Décade de résistance
- $R_5$  = Résistance complémentaire
- $N$  = Résistance fixe commutable par échelons
- $C_4$  = Décade de capacité
- $G$  = Galvanomètre
- $S$  = Fil à curseur avec prise  $S$
- $T_1$  = Commutateur de  $T_g \delta$  (Grandes ou petites valeurs)
- $T_2$  = Commutateur du galvanomètre
- $Sch$  = Blindage

Figure 18: Schéma électrique du pont de Schering.

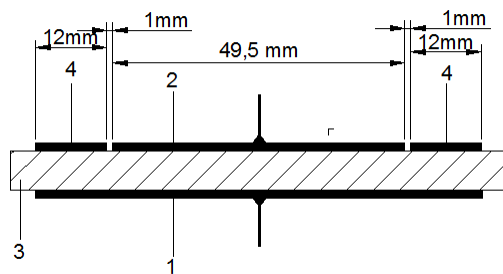
La Figure 18 représente le pont de mesure à courant alternatif de Schering. Les mesures ont été effectuées sous une tension de 1kV à 50Hz.

La cellule de mesure représentée dans la Figure 19 est un condensateur à anneau de garde. Ladite cellule permet de mesurer la capacité de l'isolant et d'en déduire la constante diélectrique ( $\epsilon_r$ ) telle que définie dans l'équation 2. Elle permet également de mesurer le facteur de pertes diélectriques ( $\text{Tan } \delta_{\text{Diélectrique}}$ )

$$\epsilon_r = 0.5647 * C_X * e \quad (2) [26]$$

Avec:  $C_X$ : la capacité de l'éprouvette en pF lue sur l'appareil

$e$  : l'épaisseur de l'éprouvette en cm.



**Légende :**

- 1 : Electrode circulaire
- 2 : Electrode circulaire gardée
- 3 : Echantillon
- 4 : Electrode de garde

**Figure 19: Electrodes circulaires avec anneau de garde.**

**II.3.4.2. MESURE DES RESISTIVITES SURFACIQUE ET VOLUMIQUE**

La même cellule utilisée pour la mesure des propriétés diélectriques a été utilisée pour la mesure des résistances surfacique ( $R_s$ ) et volumique ( $R_v$ ) des échantillons étudiés.

Les branchements indiqués dans la Figure 20 et la Figure 21 illustrent les circuits mis en place afin de caractériser les échantillons étudiés. A partir de ces circuits, la résistance mesurée ( $R_m$ ) s'exprime par la relation suivante :

$$R_m = (U - (V/101)) / (V / (101 * R_1)) \quad (3)$$

Il est à noter que la mesure de la résistivité est influencée par les conditions de test telles que la température, l'humidité et la tension d'essai. Dans le cadre de notre étude, nous avons veillé à ce que lesdites conditions soient les mêmes pour toutes les mesures afin de les rendre comparables. Ainsi, durant la mesure des résistivités des échantillons étudiés, une température de 19°C et une humidité relative de 35% ont été enregistrées. Les lectures des valeurs mesurées ont été effectuées 2 minutes après avoir appliqué une tension continue de 1kV au dispositif de mesure.

Par l'application de la loi d'Ohm, la résistivité surfacique ( $\rho_s$ ) et la résistivité volumique ( $\rho_v$ ) des échantillons s'expriment par les équations ci-dessous :

$$\rho_s = R_s * (2\pi / \ln(d_2/d_1)) \quad (4) [93]$$

Avec :  $d_1$  le diamètre de l'électrode gardée ;  $d_2$  le diamètre intérieur de l'anneau de garde

$$\rho_v = R_v * (S/e) \quad (5) [26]$$

Avec :  $S$  la surface de l'éprouvette ;  $e$  l'épaisseur de l'échantillon

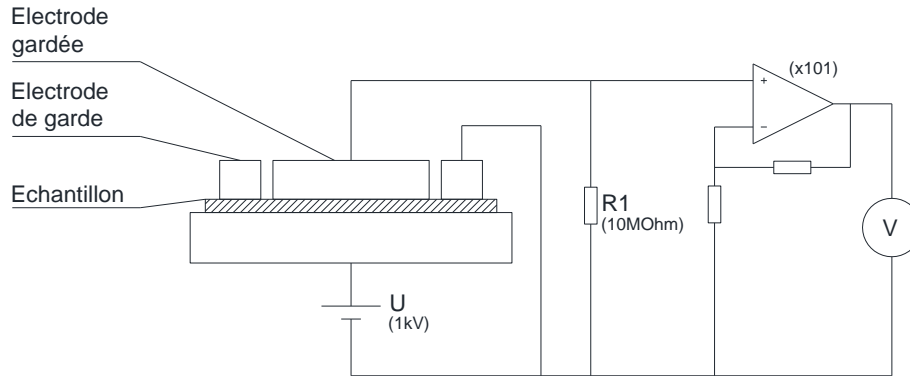


Figure 20: Circuit de mesure de la résistance volumique.

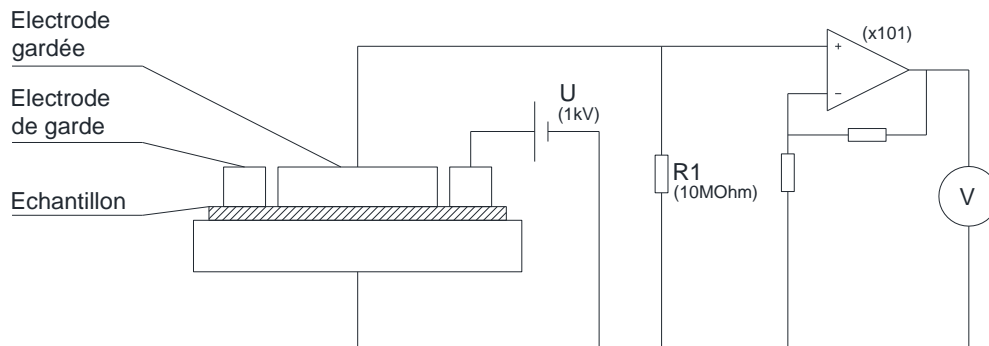


Figure 21: Circuit de mesure de la résistance surfacique.

## II.4. ANALYSE DE LA CORRELATION

La corrélation dans le langage courant se réfère à une relation au sens large du terme quant à la corrélation en statistique se réfère en général à un paramètre décrivant/résumant la relation entre deux variables [94].

Soient  $X$  et  $Y$  deux grandeurs statistiques quantitatives observées. L'analyse de la corrélation entre  $X$  et  $Y$  passe par la vérification de l'existence d'une relation entre  $X$  et  $Y$ . L'intensité de la liaison doit être quantifiée en faisant appel à un coefficient de corrélation. La significativité statistique de la liaison doit être, également, testée afin de pouvoir la valider. Une analyse graphique est ainsi établie afin de caractériser la forme de la liaison (la relation) entre  $X$  et  $Y$  (positive ou négative, linéaire ou non linéaire, monotone ou non monotone telle qu'illustrée dans la Figure 22) [95].



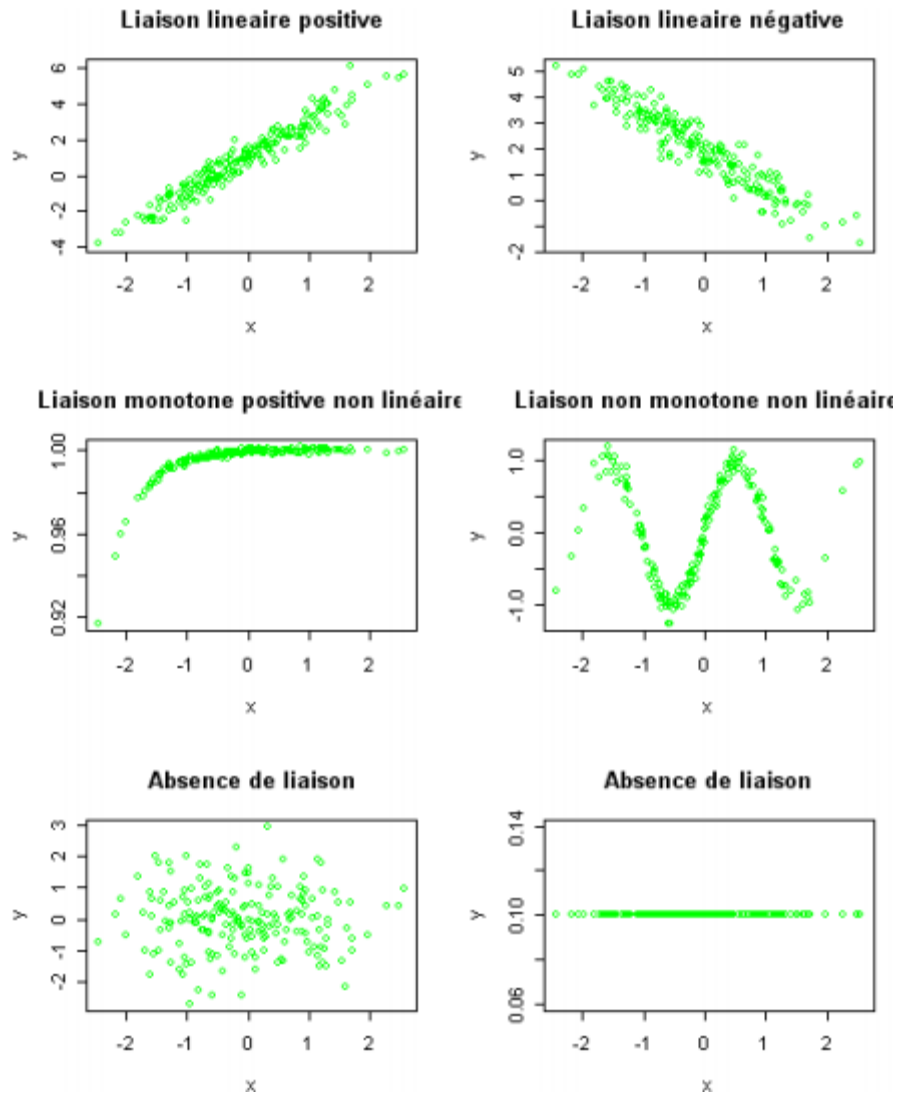


Figure 22: Types de liaisons entre deux variables [95].

### II.4.1. COEFFICIENT DE CORRELATION

Le coefficient de corrélation  $\tau$  permet de mesurer l'intensité et le sens de la relation entre deux variables. Plusieurs coefficients ont été proposés à travers la littérature. Chaque coefficient est adapté à un certain type de liaison. La taille des variables est à prendre en compte dans le choix du coefficient à utiliser.

Dans le cadre de notre travail, nous avons opté pour le coefficient de Kendall ( $\tau_k$ ). Ce coefficient mesure la corrélation de rang. Entre deux variables. Il est adapté pour l'évaluation de liaisons monotones dont la taille de l'échantillon est réduite.

$\tau_k$  est défini comme suit :

Soit  $(x_1, y_1), (x_2, y_2), \dots, (x_n, y_n)$  un ensemble d'observations de variable  $X$  et  $Y$ .

- Les paires d'observation  $(x_i, y_i)$  et  $(x_j, y_j)$  sont dites concordantes si  $x_i < x_j$  et  $y_i < y_j$  ou si  $x_i > x_j$  et  $y_i > y_j$
- Elles sont dites discordantes si  $x_i < x_j$  et  $y_i > y_j$  ou si  $x_i > x_j$  et  $y_i < y_j$
- Dans le cas où  $x_i = x_j$  ou  $y_i = y_j$ , la paire n'est concordante ni discordante

Le tau de Kendall s'exprime par la relation suivante :

$$\tau_k = (\text{nombre de paires concordantes} - \text{nombre de paires discordantes}) / (1/2 * n * (n-1)) \quad (6) [96]$$

Le coefficient de corrélation est compris dans un intervalle entre -1 et +1. Son interprétation se fait comme suit :

- Plus le coefficient est proche de 1, plus la relation est monotone positive.
- Plus le coefficient est proche de -1, plus la relation est monotone négative.
- Plus le coefficient est proche de 0, plus la relation monotone entre les variables est faible

Dans le cadre de cette étude, nous considérons que deux variables sont corrélées quand  $\tau_k$  est supérieur à 0.85.

#### II.4.2. TEST DE SIGNIFICATIVITE

Le coefficient de corrélation ne renseigne pas sur le degré de significativité d'une relation car celle-ci dépend également du nombre d'observations [97]. Le test de significativité est une procédure de décision permettant de rejeter ou d'accepter l'*hypothèse nulle* qui signifie qu'il n'y a pas de relation entre les variables.

La probabilité critique (p-valeur) est ainsi calculée. Le test de significativité repose sur la règle de décision suivante: si la p-valeur est inférieure à une valeur fixée, appelée seuil de signification, et souvent choisie (arbitrairement) à 5%, on rejette l'*hypothèse nulle*, considérée trop invraisemblable. Ce qui signifie qu'on a 5% de chances de se tromper. Si p-valeur est supérieur au seuil de signification fixé, on ne peut pas rejeter l'*hypothèse nulle* car la probabilité de se tromper est supérieur à 5% [98].

Dans le cadre de cette étude nous avons fait appel au calculateur en ligne Wessa [99] pour déterminer les p-valeurs.

#### II.4.3. ANALYSE GRAPHIQUE

L'analyse graphique permet une meilleure compréhension de la nature de la liaison entre les variables étudiées. En plaçant en abscisse la variable  $X$  et en ordonnée la variable  $Y$ , chaque observation est positionnée dans le repère ainsi constitué. Il devient, ainsi possible de situer les proximités entre les individus ; étudier la forme globale des points, voir notamment s'il existe une forme de liaison ou de régularité ; détecter visuellement les points qui s'écartent des autres telles que les observations atypiques ; vérifier s'il n'y a pas de regroupements suspects [95].

## **II.5. CONCLUSION**

Dans ce chapitre, nous avons présenté le matériau faisant l'objet de notre étude notamment l'EPDM industriel dont le monomère diène est le 5-éthylidène-2-norbornène (ENB). Nous avons donné sa formulation et décrit sa procédure de fabrication. Les conditions de vieillissements thermique et photochimique ont été décrites. Les techniques de caractérisation à différentes échelles de la matière auxquelles sera fait appel au cours de nos travaux ont été présentées. Enfin, nous avons introduit les concepts intervenant dans l'analyse de la corrélation entre deux variables.

Dans la prochaine partie de ce travail, les résultats de caractérisation seront présentés afin de pouvoir effectuer les corrélations entre les paramètres représentatifs de la dégradation avec les caractéristiques électriques et diélectriques du matériau.

# Chapitre III

## **CARACTERISATION MULTI-ÉCHELLE DU VIEILLISSEMENT THERMIQUE DE L'EPDM**

---

Dans le cadre de ce chapitre nous présenterons les résultats de la caractérisation du vieillissement thermique de l'EPDM. La dégradation du matériau sera évaluée aux échelles moléculaires, microstructurale et macroscopique. L'évolution des caractéristiques physico-chimiques, morphologiques, mécaniques et diélectriques au cours du vieillissement sera étudiée. Enfin, nous analyserons les corrélations qui peuvent apparaître entre les paramètres représentatifs du vieillissement.

### III.1. ECHELLE MOLECULAIRE

#### III.1.1. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE A TRANSFORMEE DE FOURIER

La technique FTIR en mode ATR a été utilisée dans cette étude afin d'identifier les réactions chimiques qui ont lieu au sein du matériau lors de son vieillissement thermique. De la Figure 23 à la Figure 25 nous présentons l'évolution des spectres infrarouges au cours du vieillissement des échantillons à 100, 120 et 140°C.

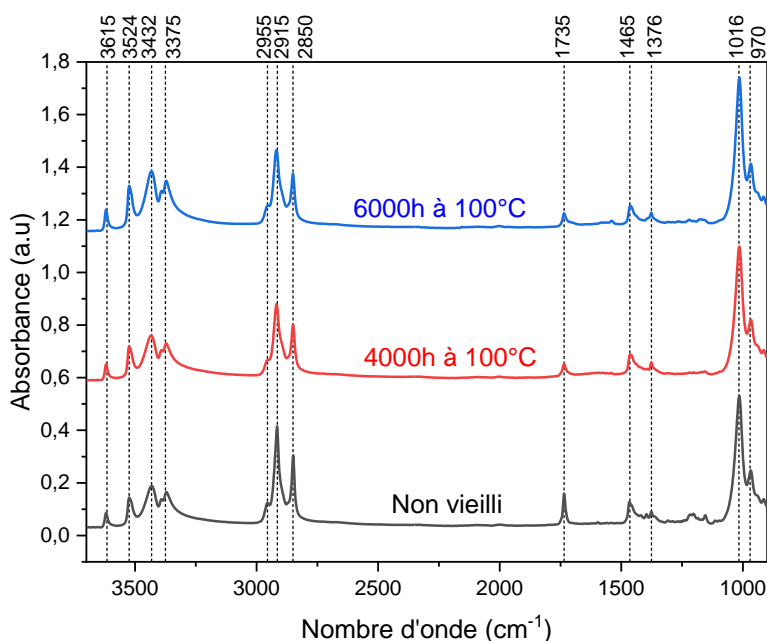


Figure 23: Evolution du spectre FTIR de l'EPDM lors de son vieillissement thermique à 100°C.

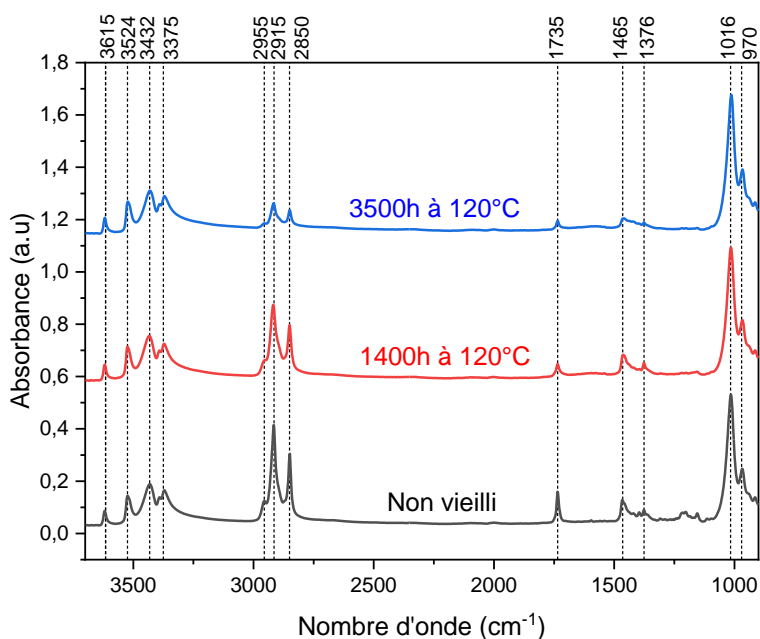
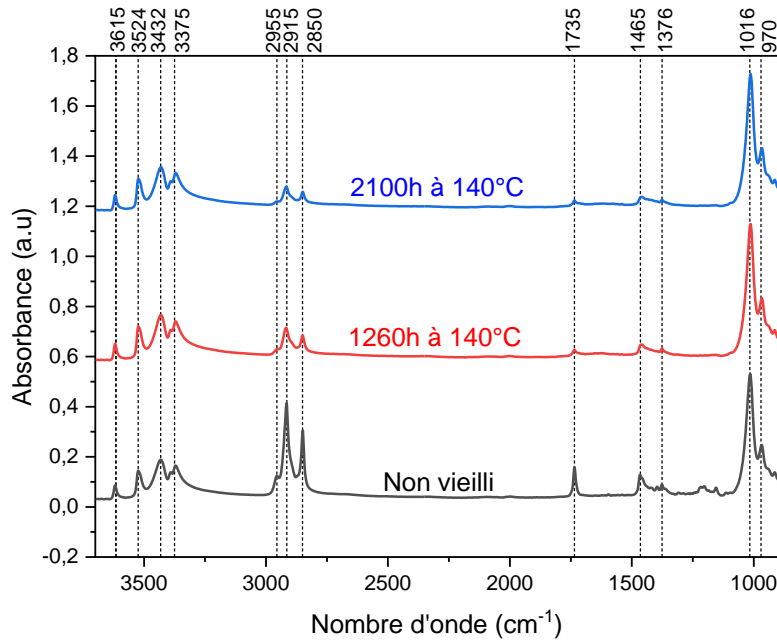


Figure 24: Evolution du spectre FTIR de l'EPDM lors de son vieillissement thermique à 120°C.



**Figure 25:** Evolution du spectre FTIR de l'EPDM lors de son vieillissement thermique à 140°C.

Les bandes caractéristiques du matériau étudié sont résumées dans le tableau 4 du chapitre II. L'analyse des résultats obtenus montre des changements sur le plan de la structure moléculaire de l'EPDM suite à son exposition aux contraintes thermiques. Il apparaît que ces changements s'accroissent avec l'augmentation de la température de vieillissement. Pour une durée de vieillissement de 2100 heures à 140°C, nous constatons un changement du spectre FTIR significativement plus marqué qu'un vieillissement à 100°C pendant 6000 heures.

Nous pouvons noter une perte des espèces carbonées dans tous les échantillons vieillis. La diminution notable au niveau des bandes (2850-2955 $\text{cm}^{-1}$  et 1376-1465 $\text{cm}^{-1}$ ) relatives aux groupements Méthylène ( $\text{CH}_2$ ) et Méthyle ( $\text{CH}_3$ ) est attribuée à la coupure des chaînes moléculaires [4, 20, 80].

Le pic observé dans la zone 1750-1720 $\text{cm}^{-1}$  est attribué à des espèces carbonyles ( $\text{C}=\text{O}$ ) (Acides carboxyliques et cétones). Ces espèces sont les produits de l'oxydation de l'EPDM. Ce pic est visible pour des échantillons neufs indiquant que l'oxydation du matériau a commencé dès sa fabrication et avant d'être soumis au vieillissement [6].

**Tableau 6:** Evolution de l'indice carbonyle (IC) en fonction de la température et de la durée du vieillissement thermique

Etat de dégradation	Indice carbonyle
Non vieilli	0.40
6000h à 100°C	0.39
3500h à 120°C	0.63
2100h à 140°C	0.65

La valeur de l'indice carbonylé (IC), telle qu'illustrée dans le Tableau 6, montre que les échantillons vieillis à 100°C n'ont pas été affectés. Néanmoins, pour des températures de vieillissement plus élevées, nous constatons une augmentation de l'indice carbonylé. Cette augmentation est synonyme d'une plus grande proportion de la thermo-oxydation dans le matériau [80]

### III.1.2. L'ANALYSE THERMOGRAVIMETRIQUE

L'analyse thermogravimétrique est utile pour l'évaluation de la stabilité thermique du matériau étudié ainsi que pour déterminer le taux des charges de l'élastomère au cours de son vieillissement. La Figure 27 et la Figure 26 montrent les thermo-grammes TGA et DTG d'échantillons neufs et vieillis thermiquement.

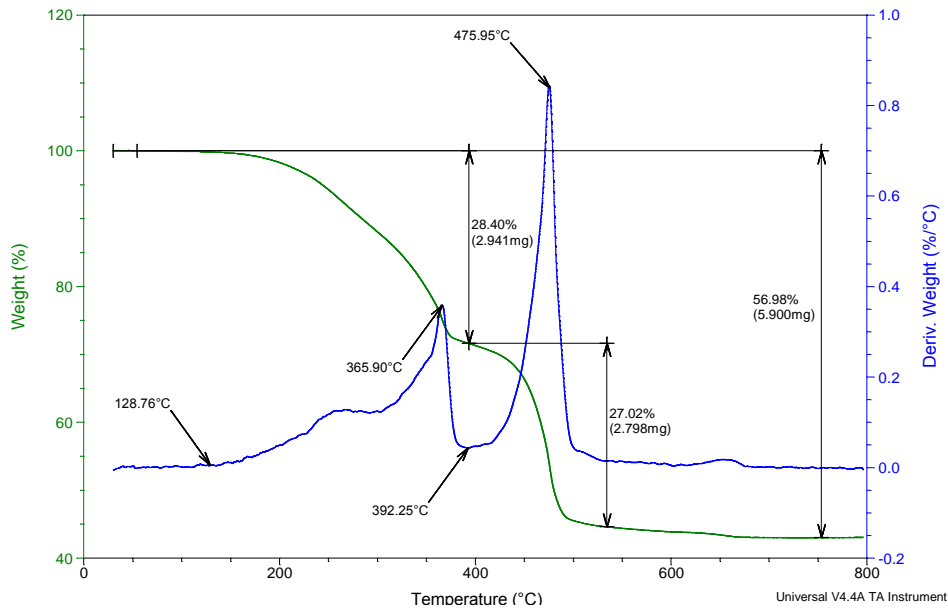


Figure 26: Thermo-grammes TGA et DTG d'un échantillon neuf

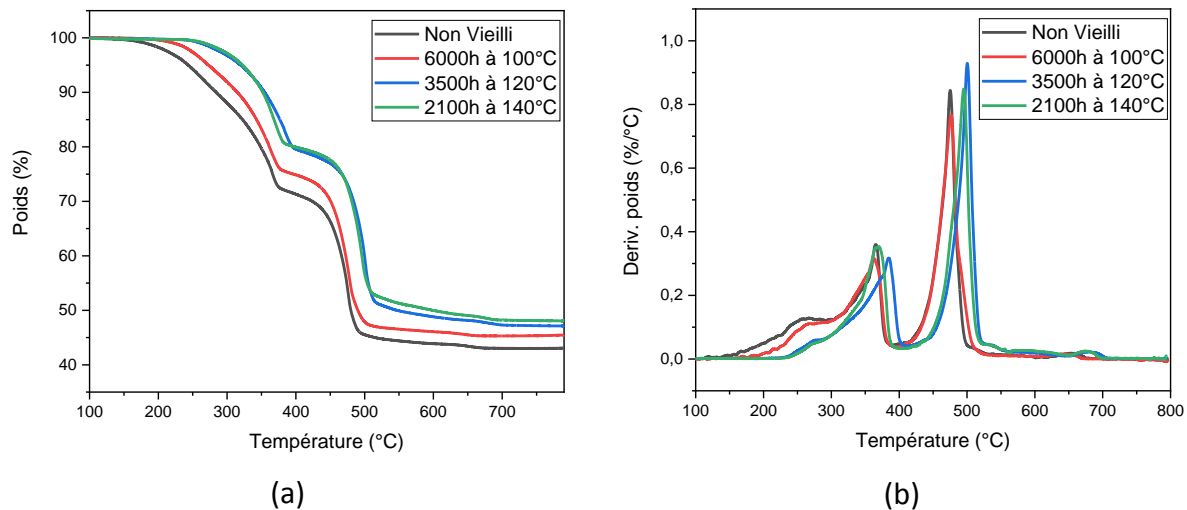


Figure 27: (A) Thermo-gramme TGA; (B) Thermo-gramme DTG d'échantillons neufs et vieillis thermiquement

En se basant sur les données obtenues à partir des diagrammes TGA et DTG tel que décrit dans la Figure 26, nous avons résumé les résultats obtenus dans le Tableau 7 ci-dessous. Les résultats enregistrés sont relatifs aux échantillons vieillis pendant les durées les plus extrêmes qui ont été appliquées dans le cadre de cette étude.

**Tableau 7: Résumé des résultats de mesure TGA & DTG pour un EPDM neuf et vieilli thermiquement**

Echantillon	Température du pic DTG du 1 <sup>er</sup> événement (°C)	Température du début du 1 <sup>er</sup> événement (°C)	1 <sup>ère</sup> perte de masse (%)	Température du pic DTG du 2 <sup>ème</sup> événement (°C)	Température du début du 2 <sup>ème</sup> événement (°C)	2 <sup>ème</sup> perte de masse (%)	Perte de masse totale (%)
New	366	129	28	476	392	27	57
6000h à 100°C	364	169	25	476	396	28	55
3500h at 120°C	383	230	21	500	414	30	53
2100 à 140°C	370	237	20	494	405	30	52

Il est possible de noter que le vieillissement thermique retarde l'apparition du premier événement de perte de masse. Cette dernière commence pour les échantillons non vieillis à 129°C alors que pour les échantillons vieillis cette température est plus importante (De 169°C à 237°C). Ce phénomène peut être attribué à la déshydratation de l'Al(OH)<sub>3</sub> et des composants volatiles du matériau [4].

La valeur du pourcentage de perte de masse du premier événement est affectée par le vieillissement thermique. La diminution de ce pourcentage indique que la dégradation appliquée favorise la perte des composants volatiles tels que les huiles, les stabilisants et les plastifiants [100-103]. A partir du même tableau, nous pouvons noter que le vieillissement thermique n'a aucun effet sur le second événement de perte de masse pour le cas des échantillons vieillis à 100°C. Cet événement est relatif à la décomposition de la matrice d'EPDM. Le pic de la courbe DTG correspondant à cet événement a lieu à une température de 475°C. Les réactions qui ont lieu lors de cet événement sont attribuées à la réaction de scission du polymère réticulé [80, 101, 102, 104, 105]. Pour le cas des échantillons vieillis à 120°C et à 140°C, nous constatons que le pic relatif au 2<sup>ème</sup> événement a lieu à des températures plus élevées.

Comme indiqué dans le Tableau 7, le pourcentage de perte de masse totale à la fin de la mesure est moins important pour les échantillons vieillis. Sa valeur décroît avec l'augmentation de la température de vieillissement. Ce phénomène indique que les échantillons perdent une partie de leurs composants au cours du vieillissement thermique.

## III.2. ECHELLE MICROSTRUCTURALE



### III.2.1. LA CALORIMETRIE DIFFERENTIELLE A BALAYAGE (DSC)

La Figure 28 correspond à un thermo-gramme DSC d'un échantillon non vieilli de l'EPDM étudié. La forme non prononcée des pics est significative d'une structure semi-cristalline du matériau [80]. Les résultats obtenus montrent une transition vitreuse ayant lieu à une  $T_g$  égale à  $-61^\circ\text{C}$  et un pic endothermique ayant lieu à une température de fusion  $T_m$  égale à  $26^\circ\text{C}$  pour une enthalpie  $\Delta H_m$  égale à  $1,31\text{J/g}$ .

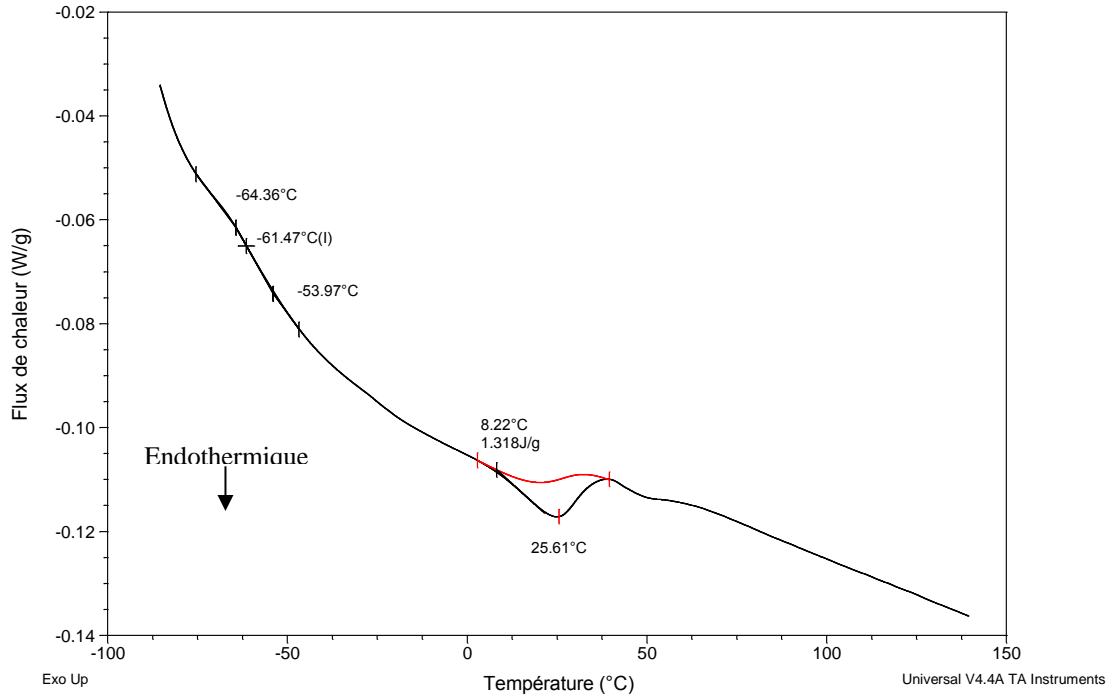


Figure 28: Thermogramme DSC du premier cycle d'échauffement d'un échantillon neuf.

Tableau 8: Résumé des résultats de mesure DSC pour un EPDM neuf et vieilli thermiquement

Echantillon	$T_g$ ( $^\circ\text{C}$ )	$T_m$ ( $^\circ\text{C}$ )	$\Delta H_m$ (J/g)	$\chi$ (%)
Non vieilli	-61	26	1.31	0.45
2000h à $100^\circ\text{C}$	-59	25	1.31	0.45
6000h à $100^\circ\text{C}$	-54	26	0.81	0.28
1400h à $120^\circ\text{C}$	-49	25	0.48	0.17
2800h à $120^\circ\text{C}$	-44	24	0.35	0.12
1260h à $140^\circ\text{C}$	-43	24	0.35	0.12
2100h à $140^\circ\text{C}$	-39	23	0.2	0.07

Le Tableau 8 résume les résultats des mesures DSC pour les échantillons soumis au vieillissement thermique. Il est possible de noter que l'exposition à des contraintes thermiques engendre une augmentation de la température de transition vitreuse. Ce phénomène peut être assimilé à une réticulation et/ou une migration des plastifiants [105]. L'augmentation de  $T_g$

implique une modification de la mobilité des molécules qui sera vérifiée à travers des mesures électriques au cours de cette étude.

Il est à noter que le vieillissement thermique a pour effet de réduire l'enthalpie de fusion  $\Delta H_m$ . Cette diminution est dû à une réduction du degré de cristallinité  $\chi$  du matériau. La diminution de  $\chi$  peut être attribuée à une scission des chaînes accompagnée d'une réticulation [106-108]. Cette dégradation perturbe l'ordre cristallin du polymère [80, 109]. Elle réduit, également, la longueur des chaînes macromoléculaires [110].

### III.2.2. MICROSCOPE ELECTRONIQUE A BALAYAGE (MEB)

A partir des résultats de l'imagerie MEB indiqués dans la Figure 29 et la Figure 30, on constate que le vieillissement thermique a un effet sur la topographie de la surface du matériau. En effet, les échantillons non vieillis présentent une surface relativement lisse. Avec l'augmentation du temps de vieillissement des dépressions commencent à apparaître pouvant être interprétées par un décollement de la couche superficielle du polymère. Cette couche représente la couche de finition lors du processus de moulage [111].

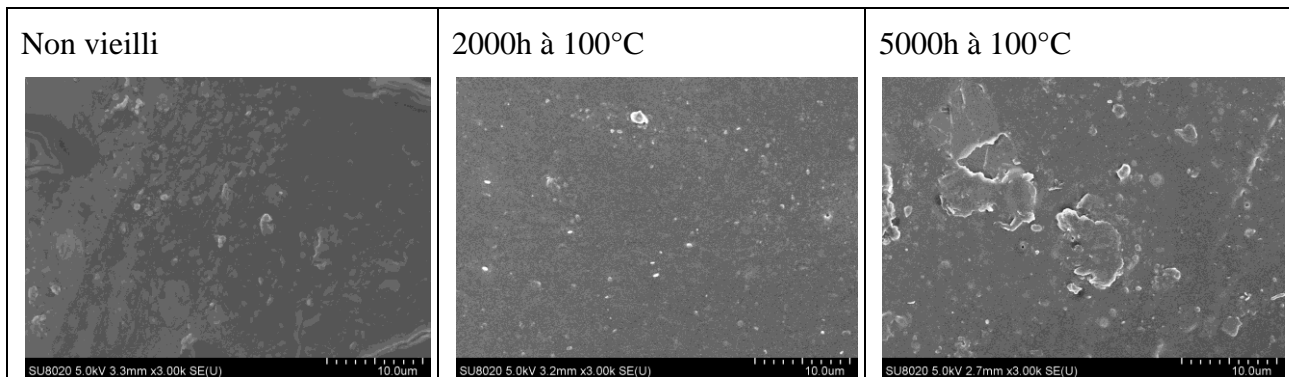


Figure 29: Evolution de la microstructure de surface d'un EPDM vieilli à 100°C.

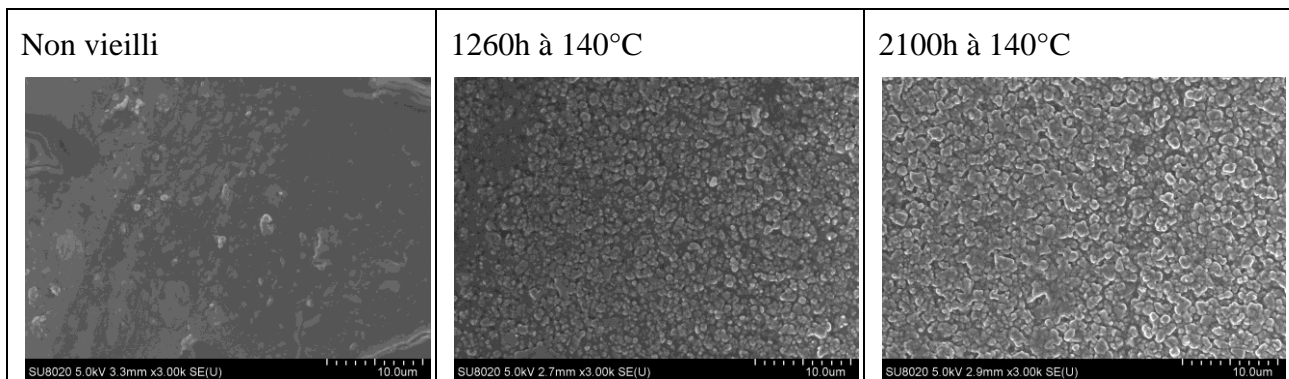


Figure 30: évolution de la microstructure de surface d'un EPDM vieilli à 140°C.

Ladite couche, constituée principalement de polymère, est substituée progressivement au cours du vieillissement par un composé de polymère et de charges. Ce processus a pour effet d'augmenter la rugosité de la surface de l'échantillon.

Il est à noter que le changement de la topographie de la surface de l'échantillon est faiblement marqué pour le cas du vieillissement à 100°C. Les échantillons vieillis à 140°C connaissent une évolution différente car leur surface se trouve significativement affectée au cours de la dégradation.

### III.2.3. SPECTROSCOPIE A RAYONS X A DISPERSION D'ENERGIE

Etant donné que les produits de l'oxydation de l'EPDM sont nombreux, il est difficile de cerner l'étendue du processus de la thermo-oxydation en se basant sur le suivi de l'évolution d'un seul produit [10]. Ainsi, la technique de la Spectroscopie à rayons X à dispersion d'énergie (EDS) a été utilisée dans cette étude en complément à la spectroscopie FTIR pour évaluer l'étendue de l'oxydation dans le matériau. Cette technique présente l'avantage de quantifier la composition du matériau et permet ainsi de connaître l'ampleur des réactions chimiques qui s'y tiennent.

Le Tableau 9 et le Tableau 10 montrent le pourcentage de la composition en poids des atomes d'oxygène (O) de carbone (C) et d'aluminium (Al) au sein des échantillons analysés ainsi que les ratios O/C et Al/C.

**Tableau 9: Résumé des mesures EDS pour un EPDM vieilli à 100°C**

	C		O		Al		O/C	Al/C
	Poids (%)	Erreur (%)	Poids (%)	Erreur (%)	Poids (%)	Erreur (%)		
Neuf	52,2	±0,3	27,5	0,4	18,9	±0,1	0,52	0,36
2000h	42,6	±0,5	29,1	0,5	25,6	±0,5	0,68	0,60
5000h	42,8	±0,7	23,6	0,5	21,9	±0,1	0,55	0,51

**Tableau 10: Résumé des mesures EDS pour un EPDM vieilli à 140°C**

	C		O		Al		O/C	Al/C
	Poids (%)	Erreur (%)	Poids (%)	Erreur (%)	Poids (%)	Erreur (%)		
Neuf	52,2	±0,3	27,5	±0,4	18,9	±0,1	0,52	0,36
1260h	20,3	±0,3	50,3	±0,4	26,5	±0,1	2,47	1,30
2100h	18,4	±0,2	51,5	±0,4	26,8	±0,1	2,79	1,45

Les mesures obtenues montrent que les ratios O/C et Al/C augmentent au cours de la dégradation pour une température de vieillissement de 140°C alors qu'ils restent stables pour une température de 100°C. Ces résultats sont conformes à ceux obtenus par la spectroscopie FTIR où il a été montré que les échantillons soumis aux températures de 120°C et 140°C subissaient une dépolymérisation et une oxydation. En effet, l'augmentation du ratio O/C est attribuée à la thermo-oxydation de l'EPDM. L'augmentation du rapport Al/C est représentative d'un accroissement de la proportion d'ATH sur la surface de l'échantillon. Ce résultat est conforté par

la microscopie électronique à balayage où il a été constaté qu'au cours du vieillissement, la couche de finition composée essentiellement du polymère se dissipe au profit d'une couche composée du polymère et des charges qui rentrent dans la composition du matériau étudié.

### III.3. ECHELLE MACROSCOPIQUE

#### III.3.1. L'ANALYSE THERMOMECHANIQUE DYNAMIQUE (DMA)

Les caractéristiques viscoélastiques des échantillons neufs et vieillis sont illustrées dans la Figure 31, la Figure 32 et la Figure 33. La température correspondant au maximum du pic du facteur d'amortissement ( $\text{Tan } \delta$ ) est considérée comme étant la température de transition vitreuse  $T_g$ . Nous pouvons noter que cette dernière augmente avec le temps de vieillissement. Son augmentation est d'autant plus rapide quand la température de vieillissement est plus élevée. La diminution de l'amplitude des pics observés et l'augmentation de  $T_g$  sont causées par la réticulation du matériau [112]. L'augmentation de  $T_g$  peut être également expliquée par une polarité plus importante suite à une scission des chaînes et ainsi une attraction moléculaire plus importante. L'augmentation du taux des charges suite à la dépolymérisation et à la dégradation des composants volatiles peut avoir un effet sur la valeur de  $T_g$  [113].

Il est à noter que le comportement observé à travers les caractéristiques viscoélastiques du matériau n'indique pas si ce dernier subit uniquement une réticulation ou une scission des chaînes. Les deux phénomènes peuvent prendre place avec une légère prédominance de la réticulation [113]. Nous pouvons noter que les températures de transition vitreuse mesurées par la méthode DMA diffèrent de celles mesurées par la méthode DSC. Cette différence qui peut atteindre  $25^\circ\text{C}$  [114, 115] est due au fait que les mesures se font sur des échelles structurales différentes. La comparaison des résultats doit, donc, se faire avec des mesures faisant appel aux mêmes méthodes.

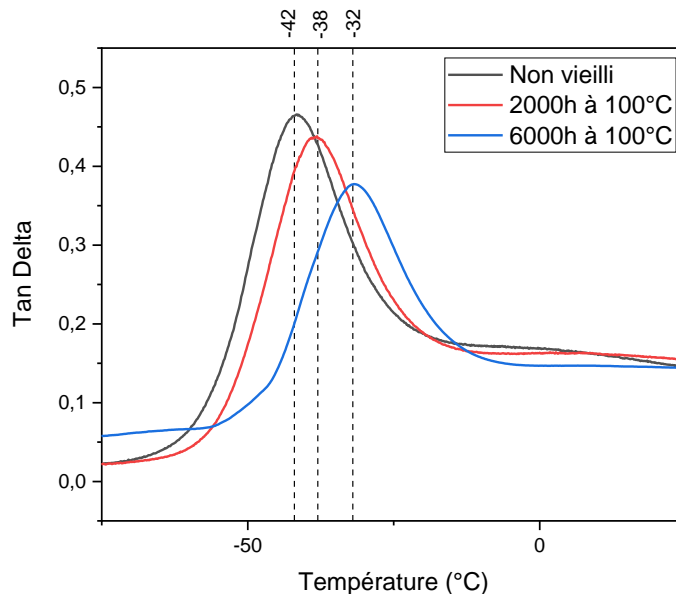


Figure 31: Tracé du facteur d'amortissement en fonction de la température pour un EPDM vieilli à  $100^\circ\text{C}$ .

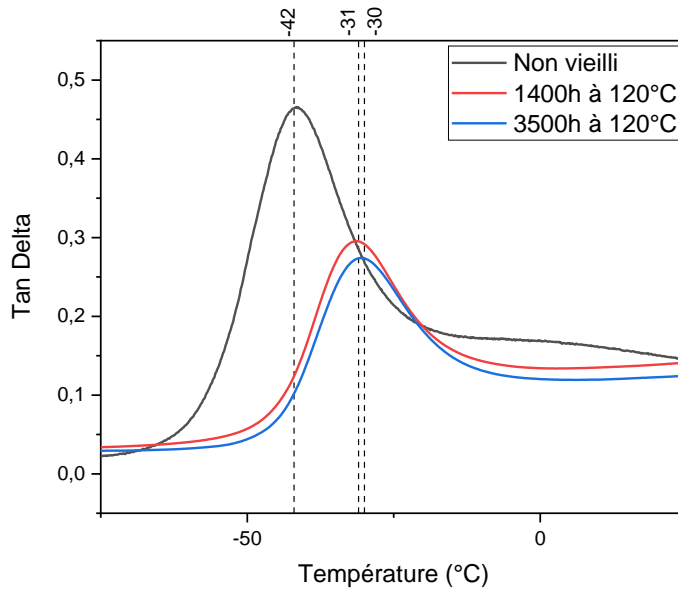


Figure 32: Tracé du facteur d'amortissement en fonction de la température pour un EPDM vieilli à 120°C.

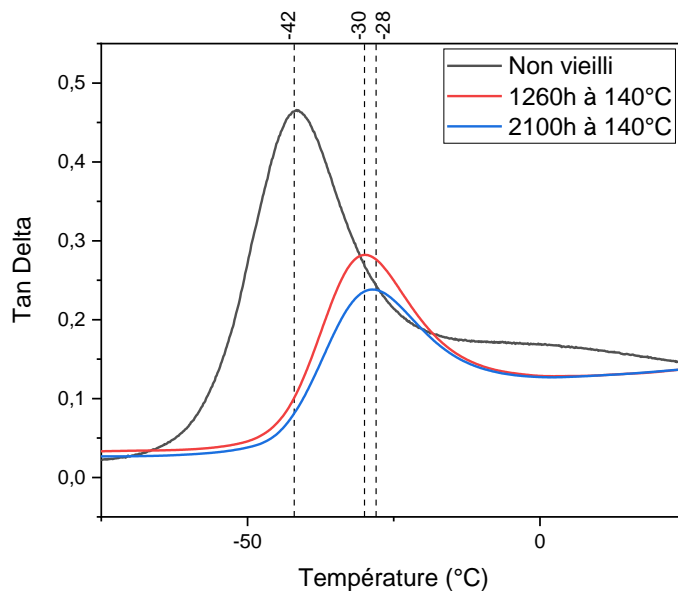
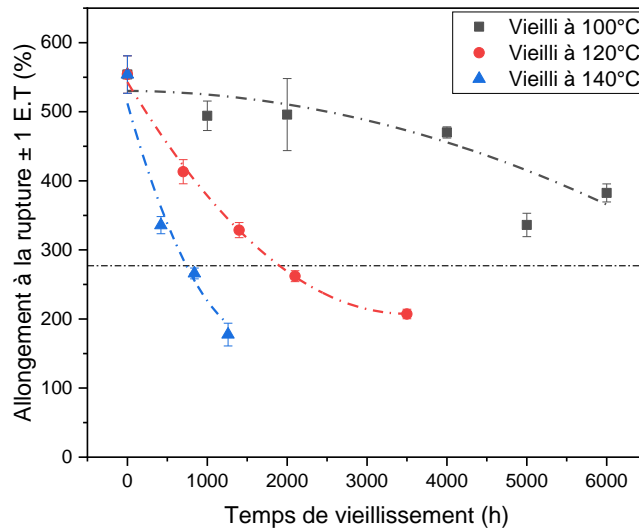


Figure 33: Tracé du facteur d'amortissement en fonction de la température pour un EPDM vieilli à 140°C.

### III.3.2. ESSAIS MECANQUES

#### III.3.2.1. ESSAIS MECANQUES DE TRACTION A LA RUPTURE

La Figure 34 présente la variation de l'allongement à la rupture ( $A_{aR}$ ) de l'EPDM étudié le long de son vieillissement thermique. Chaque point représente la moyenne arithmétique de trois valeurs expérimentales et leur écart type (E.T). Les courbes d'ajustement, représentées en lignes discontinues, ont été obtenues par la méthode de régression sur la base des données expérimentales.



**Figure 34: Evolution de l'allongement à la rupture en fonction du temps pour un EPDM vieilli thermiquement.**

Nous pouvons noter à partir des courbes tracées que le vieillissement thermique influe sur l'allongement à la rupture de l'EPDM. L'exposition de ce matériau à la contrainte thermique a pour effet de diminuer la valeur de  $A_{aR}$ . Il est possible d'observer que cette diminution s'accélère avec l'augmentation de la température de vieillissement. Selon plusieurs auteurs [116-121], la diminution de  $A_{aR}$  serait due à la scission des chaînes macromoléculaires. La formation de chaînes plus courtes suite à la thermo-oxydation du matériau a pour effet de conduire à la dégradation de ses propriétés mécaniques.

En analysant l'évolution des courbes de  $A_{aR}$  pour les différentes températures de vieillissement, il apparaît que l'oxydation du matériau commence dès le début du vieillissement. Ce processus est accéléré avec l'augmentation de la température. En effet, la diminution de la fraction cristalline, qui a été vérifiée par les mesures DSC, facilite la diffusion de l'oxygène d'où une scission des chaînes [122, 123].

### III.3.2.2. MESURE DE LA DURETE

La Figure 35 indique la variation de la dureté Shore A de l'EPDM le long de son vieillissement thermique. Chaque point représente la moyenne arithmétique de neuf valeurs expérimentales (Trois échantillons avec trois mesures pour chaque échantillon) ainsi que leur écart type (E.T). Les courbes d'ajustement, représentées en lignes discontinues, ont été obtenues par la méthode de régression sur la base des données expérimentales.

Il apparaît que les échantillons vieillis à 100°C connaissent une augmentation progressive commençant par une valeur initiale de 75 jusqu'à atteindre une valeur de 82. Un comportement différent est observé dans le cas du vieillissement à 120°C et à 140°C où l'on observe que la valeur de la dureté augmente rapidement à une valeur de l'ordre 85 dès le premier prélèvement après vieillissement. Il s'en suit une augmentation progressive jusqu'à 92 pour le vieillissement à 120°C et 94 pour le vieillissement à 140°C.

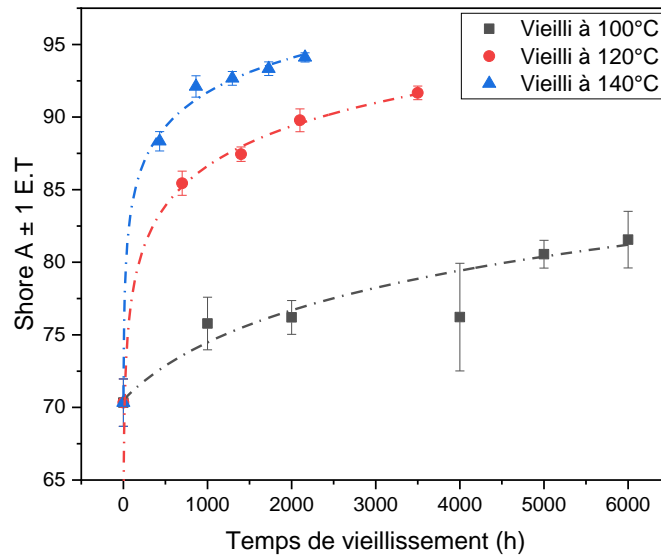


Figure 35: Evolution de la dureté en fonction du temps pour un EPDM vieilli thermiquement.

L'augmentation de la dureté des échantillons est caractéristique de l'augmentation de la réticulation du matériau. Tel que décrit par Tomer et al [4], à cause de la réticulation, la surface des échantillons devient plus dure car les chaînes macromoléculaires du polymère ne peuvent pas suivre de nouvelles configurations lors des contraintes de déformation. Le matériau devient, ainsi, moins flexible.

### III.3.3. ANALYSE DE LA COLORIMETRIE

La Figure 36 montre la variation du changement de la colorimétrie en fonction du temps de vieillissement. La valeur de  $\Delta E$  a été calculée en prenant comme point de référence la couleur d'un échantillon neuf.  $\Delta E$  est donc nul pour les échantillons non vieillis.

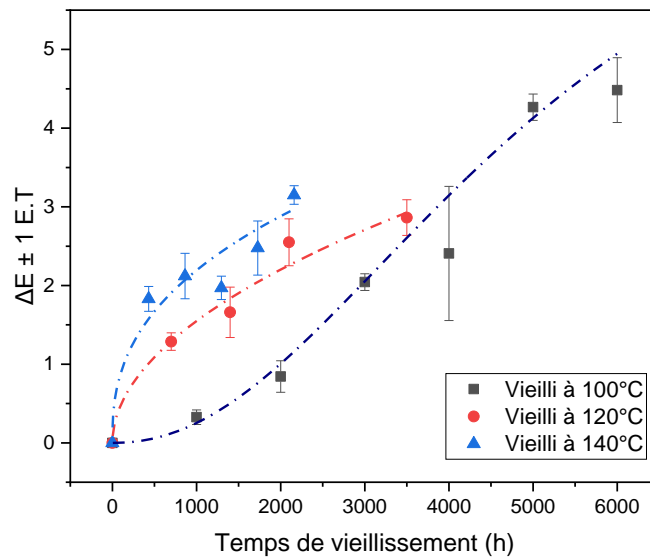


Figure 36: Evolution du changement de couleur dans l'espace CIE-L\*A\*B\* en fonction du temps pour un EPDM vieilli thermiquement.

Chaque point représente la moyenne arithmétique de trois valeurs expérimentales ainsi que leur écart type (E.T). Les courbes d'ajustement, représentées en lignes discontinues, ont été obtenues par la méthode de régression sur la base des données expérimentales.

Les résultats obtenus montrent que le vieillissement thermique influe clairement sur la colorimétrie des échantillons. Dans le cas des échantillons vieillis à 100°C, l'augmentation du temps de vieillissement a pour effet d'augmenter  $\Delta E$  d'une manière quasi-uniforme. Dans le cas des échantillons vieillis à 120°C et à 140°C, nous pouvons constater que le changement de couleur augmente sensiblement dès le début du vieillissement. Cette augmentation continue de manière uniforme au cours de la dégradation. Telle que constatée pour les caractéristiques mécaniques, l'augmentation de la température de vieillissement a pour effet d'accélérer la variation de  $\Delta E$ .

### III.3.4. ANALYSE ELECTRIQUE

#### III.3.4.1. MESURE DE LA PERMITTIVITE RELATIVE

L'évolution de la permittivité relative en fonction du temps de vieillissement est indiquée dans la Figure 37. Chaque point représente la moyenne arithmétique de trois valeurs expérimentales ainsi que leur écart type (E.T).

Les courbes d'ajustement, représentées en lignes discontinues, ont été obtenues par la méthode de régression sur la base des données expérimentales. Dans le cas des échantillons vieillis à 100°C,  $\epsilon_r$  ne varie pas d'une manière significative. La courbe de régression est, ainsi, sous la forme d'une constante.

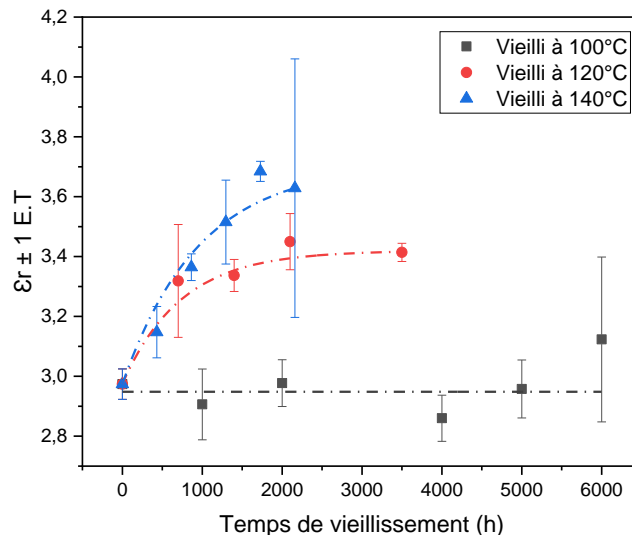


Figure 37: Evolution de la permittivité relative en fonction du temps pour un EPDM vieilli thermiquement.

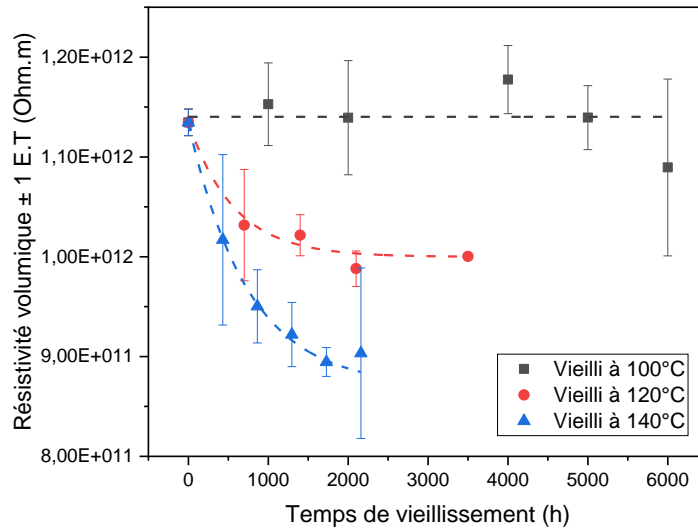
Dans le cas des échantillons vieillis à 120 et 140°C, nous pouvons noter que la permittivité relative augmente avec le temps de vieillissement. Lorsque la température de vieillissement est plus élevée, nous observons que la permittivité relative augmente plus rapidement.  $\epsilon_r$  atteint une



valeur de 3.6 après 2100 heures de vieillissement à 140°C. Pour la même durée elle atteint une valeur de 3.4 pour un vieillissement à 120°C.

L'exposition du matériau à un stress thermique prolongé implique sa réticulation d'où la réduction de son volume. Sa capacité se voit, ainsi, augmentée [124]. Ladite capacité est proportionnelle à la permittivité relative du matériau.

### III.3.4.2. MESURE DE LA RESISTIVITE VOLUMIQUE



**Figure 38: Evolution de la permittivité relative en fonction du temps pour un EPDM vieilli thermiquement.**

La Figure 38 montre l'évolution de la résistivité volumique ( $\rho_s$ ) de l'EPDM au cours de son vieillissement thermique. Chaque point représente la moyenne arithmétique de trois valeurs expérimentales ainsi que leur écart type (E.T).

Les courbes d'ajustement, représentées en lignes discontinues, ont été obtenues par la méthode de régression sur la base des données expérimentales.

A travers la Figure 38, la résistivité volumique de l'EPDM diminue lorsque les échantillons sont soumis à un vieillissement thermique. Cette diminution indique que le matériau est soumis à un phénomène de scission des chaînes et à la génération de produits de thermo-oxydation. Ces processus entraînent une augmentation de la mobilité des porteurs de charge [125, 126]. Ces observations sont confortées par les mesures DSC et DMA où il a été possible d'observer une augmentation de  $T_g$  impliquant une modification de la mobilité des molécules.

## III.4. EVALUATION DE LA CORRELATION ENTRE LES PARAMETRES REPRESENTATIFS DU VIEILLISSEMENT

Les résultats de caractérisation du vieillissement thermique nous permettent de mettre en lumière certains paramètres représentatifs de la dégradation thermique. Dans le cadre de notre étude nous avons évalué la corrélation qui peut avoir lieu entre ces paramètres en calculant le coefficient de

Kendall ( $\tau_k$ ) qui mesure la corrélation de rang entre deux variables. La p-valeur a été calculée afin d'évaluer la significativité de la corrélation.

**Tableau 11: Récapitulatif des coefficients de corrélation de rang de Kendall pour un EPDM vieilli à 120°C**

<b>A<sub>aR</sub></b>	<b>ΔE</b>	<b>Shore A</b>	<b>R<sub>v</sub></b>	
-0.8	0.8	0.8	<b>-1</b>	<b>ε<sub>r</sub></b>
	<b>-1</b>	<b>-1</b>	0.8	<b>A<sub>aR</sub></b>
		<b>1</b>	-0.8	<b>ΔE</b>
			-0.8	<b>Shore A</b>

**Tableau 12: Récapitulatif des p-valeurs pour un EPDM vieilli à 120°C**

<b>A<sub>aR</sub></b>	<b>ΔE</b>	<b>Shore A</b>	<b>R<sub>v</sub></b>	
0.086	0.086	0.086	<b>0.027</b>	<b>ε<sub>r</sub></b>
	<b>0.027</b>	<b>0.027</b>	0.086	<b>A<sub>aR</sub></b>
		<b>0.027</b>	0.086	<b>ΔE</b>
			0.086	<b>Shore A</b>

Les méthodes de caractérisation utilisées dans le cadre de cette étude ont montré un effet marqué du vieillissement thermique pour des températures de dégradation de 120°C et de 140°C. L'effet du vieillissement à 100°C n'a pas pu être détecté par certaines des méthodes de caractérisations auxquelles nous avons fait appel. Afin de définir les corrélations qui peuvent apparaître entre le maximum de paramètres représentatifs du vieillissement lors d'une dégradation thermique, nous nous sommes intéressés dans le cadre de cette étude au cas des résultats obtenus pour des échantillons vieillis à 120°C.

A partir des résultats de calcul de  $\tau_k$  et de p-valeur indiqués respectivement dans le Tableau 11 et le Tableau 12, nous pouvons noter de fortes corrélations pour certaines paires de paramètres.

Nous pouvons noter à partir de la Figure 39 que la résistance volumique d'un EPDM vieilli à 120°C présente une liaison linéaire négative avec sa permittivité relative. Les mesures expérimentales ont permis de tracer une droite de régression.

La Figure 40 montre une liaison linéaire négative entre  $\Delta E$  et  $A_{aR}$ , Tel qu'illustré dans ladite figure, une droite de régression a été tracée à partir des mesures expérimentales.

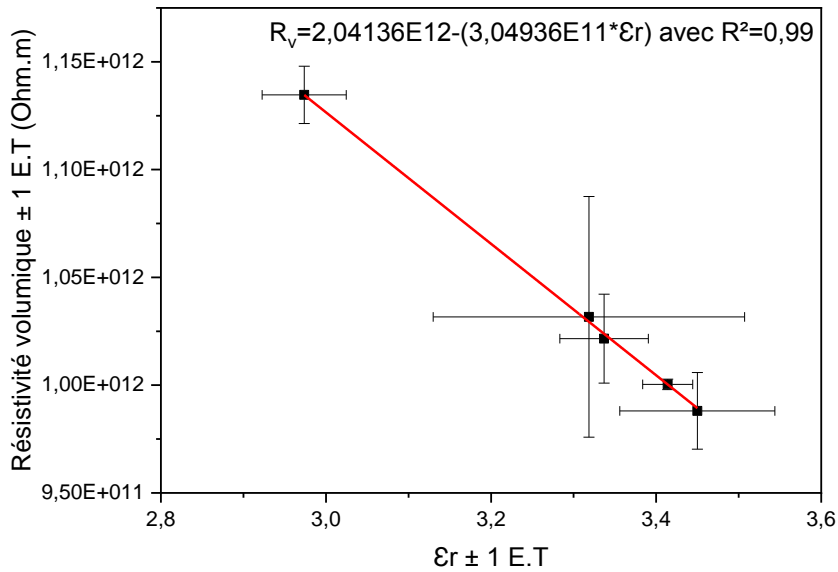


Figure 39: Courbe de liaison de la permittivité relative avec la résistivité volumique pour un EPDM vieilli à 120°C.

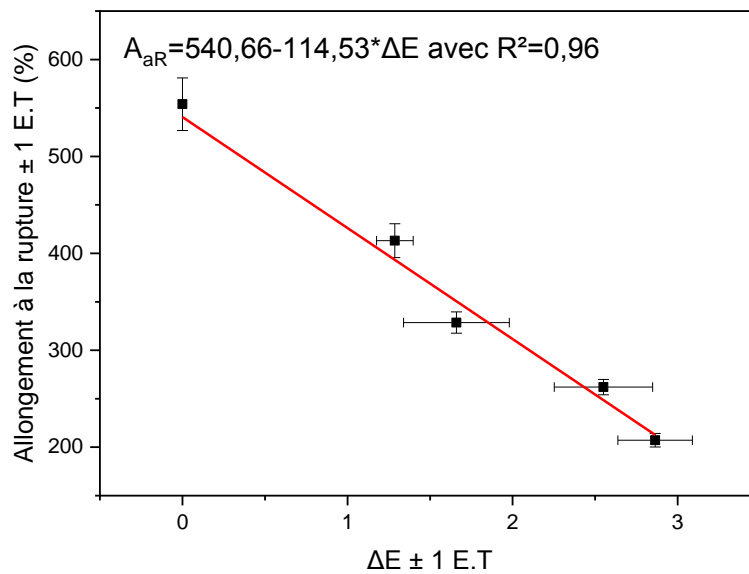


Figure 40: Courbe de liaison de l'allongement à la rupture avec le changement de couleur pour un EPDM vieilli à 120°C.

Il apparaît à partir des résultats illustrés dans la Figure 41 qu'une liaison négative existe entre  $A_{aR}$  et la dureté du matériau lors de son vieillissement thermique. Une courbe de régression a été tracée à partir des mesures expérimentales en appliquant un modèle exponentiel dont l'équation et le coefficient de détermination sont indiqués dans la figure concernée.

La Figure 42 montre une liaison positive entre la dureté et  $\Delta E$ . Une courbe de régression a été tracée à partir des mesures expérimentales en appliquant un modèle exponentiel.

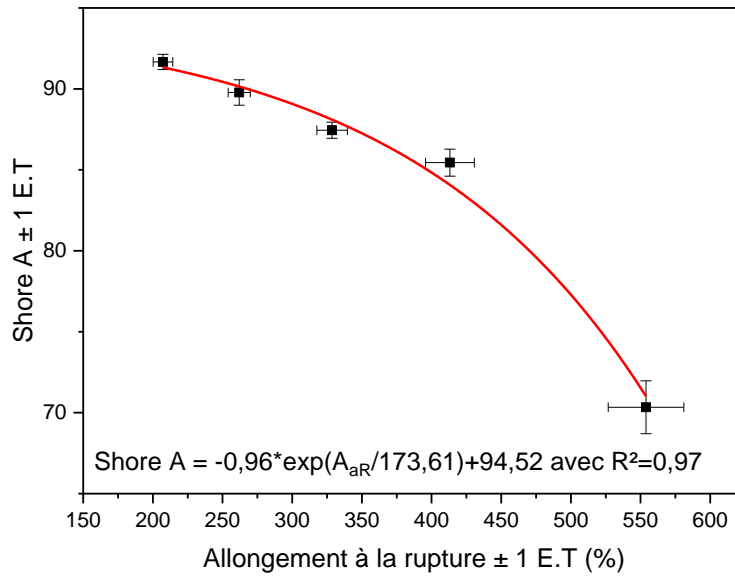


Figure 41: Courbe de liaison de l'allongement à la rupture avec la dureté pour un EPDM vieilli à 120°C.

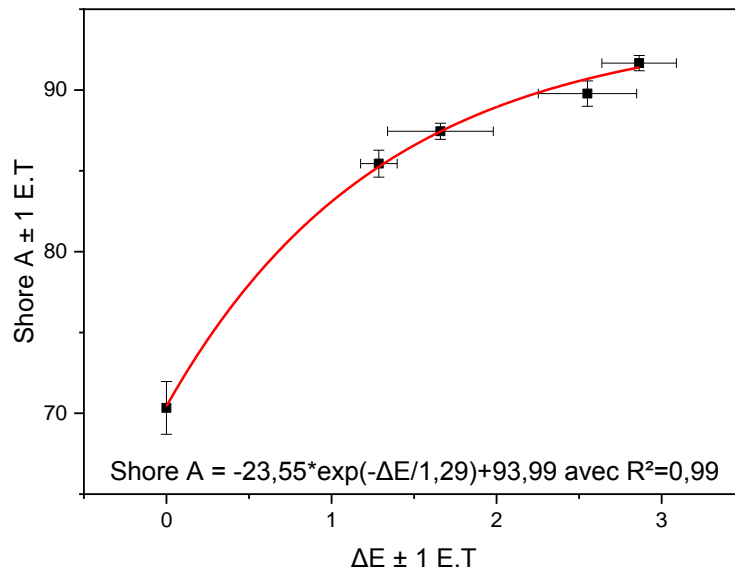


Figure 42: Courbe de liaison de la dureté avec le changement de couleur pour un EPDM vieilli à 120°C.

### III.5. CONCLUSION

Le long de ce chapitre, nous avons étudié l'influence du vieillissement thermique sur l'EPDM à différentes échelles de la matière.

Nous avons ainsi déterminé les principaux mécanismes responsables de la dégradation du matériau lors de son exposition à des contraintes thermiques. La réticulation et la thermo-oxydation sont les principaux mécanismes qui ont pu être observés.

La dégradation thermique de l'EPDM est accompagnée par la génération de groupes carbonylés (C=O) et la perte de ses composants volatiles tels que les huiles, les stabilisants et les plastifiants.

Lors du vieillissement thermique, il est apparu que la scission des chaînes commence dès le début de l'essai de vieillissement. Cette dégradation a lieu à une température de 100°C. Son ampleur prend de l'importance avec l'augmentation de la température de vieillissement. En contrepartie, l'effet de la réticulation est moins marqué pour une température de vieillissement de 100°C. Il est, par contre, très visible pour des températures de vieillissement de 120°C et de 140°C.

A travers la mesure des caractéristiques électriques et diélectriques lors du vieillissement thermique de l'EPDM, il est apparu qu'une forte liaison existe entre la permittivité relative du matériau et sa résistivité volumique. Nous pouvons en déduire que les mêmes mécanismes interviennent dans l'évolution des dites propriétés.

Le changement de la colorimétrie du matériau s'avère être un paramètre significatif du vieillissement thermique de l'EPDM du fait du fort couplage que présente cette caractéristique avec l'allongement à la rupture et la dureté. Grâce aux modèles de régression établis dans le cadre de cette étude, il devient possible d'évaluer les propriétés mécaniques du matériau en faisant appel à des mesures de la colorimétrie qui sont non destructives et faciles à mettre en œuvre.

# Chapitre IV

## **CARACTERISATION MULTI-ÉCHELLE DU VIEILLISSEMENT DE L'EPDM SOUS RAYONNEMENT ULTRAVIOLET**

---

Nous nous attacherons à présenter dans ce chapitre les résultats de la caractérisation du vieillissement de l'EPDM sous rayonnement ultraviolet. Le suivi du vieillissement sera fait aux échelles moléculaire, microstructurale et macroscopique. Les liaisons qui peuvent exister entre les paramètres représentatifs du vieillissement seront ensuite analysées.

## IV.1. ECHELLE MOLECULAIRE

### IV.1.1. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE A TRANSFORMEE DE FOURIER

Nous avons fait appel dans cette étude à la technique FTIR en mode ATR afin d'identifier les réactions chimiques qui ont lieu au sein du matériau lors de son vieillissement sous rayonnement ultraviolet.

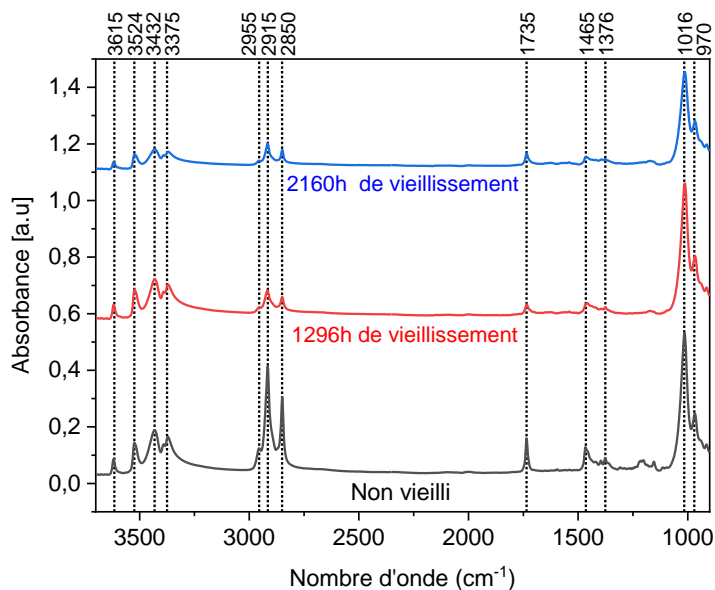


Figure 43: Evolution du spectre FTIR de l'EPDM lors de son vieillissement sous rayonnement ultraviolet.

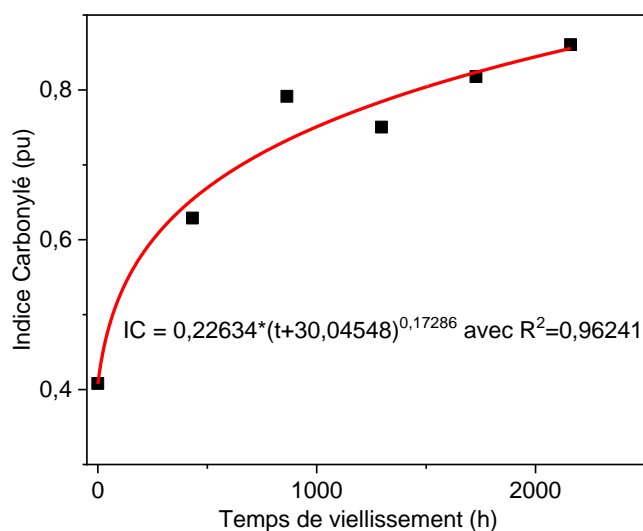


Figure 44: Evolution de l'indice carbonyle de l'EPDM lors de son vieillissement sous rayonnement ultraviolet.

A travers la Figure 43 nous présentons les spectres infrarouges des échantillons neufs et vieillis sous rayonnement ultraviolet. Les résultats obtenus montrent des changements sur le plan de la

structure moléculaire de l'EPDM. Les bandes caractéristiques du matériau étudié sont résumées dans le tableau 4 du chapitre II.

Il est possible de noter à travers les spectres infrarouges une perte des espèces carbonées au niveau de l'échantillon soumis au vieillissement. La dépolymérisation du matériau peut être responsable de ce phénomène.

Nous pouvons noter un pic dans la zone  $1750-1720\text{cm}^{-1}$  qui est attribué à des espèces carbonylées (Acides carboxyliques et cétones) issues de l'oxydation de l'EPDM. Etant donné que ce pic est visible pour des échantillons non vieillis, nous pouvons en déduire que l'oxydation du matériau a commencé avant d'être soumis au vieillissement accéléré [6].

La Figure 44 montre l'évolution de l'indice carbonylé (IC) en fonction du temps de vieillissement sous rayonnement ultraviolet. Nous pouvons noter qu'IC double sa valeur passant de 0,4 à 0,79 en 900 heures de vieillissement. Il s'en suit une phase où IC augmente d'une manière moins soutenue pour atteindre une valeur de 0,86 au bout de 2160 heures de dégradation. Une courbe d'ajustement a été tracée sur la base des mesures expérimentales en appliquant le modèle de régression exprimé ci-dessous :

$$IC = 0,22634*(t+30,04548)^{0,17286} \quad (7)$$

Tel que t est le temps de vieillissement en heures. Le coefficient de détermination ( $R^2$ ) de ce modèle de régression est égal à 0,96241.

L'évolution de la valeur de l'indice carbonylé en fonction du temps nous permet de connaître l'ampleur que prend l'oxydation du matériau au cours de son vieillissement. Il apparaît que le matériau est influencé par le rayonnement UV. La photo-oxydation est, ainsi, un processus de dégradation à prendre en considération.

#### **IV.1.2. L'ANALYSE THERMOGRAVIMETRIQUE**

Nous avons fait appel dans ce chapitre à l'analyse thermogravimétrique afin d'évaluer la stabilité thermique du matériau soumis au vieillissement sous rayonnement ultraviolet.

La Figure 45 montre les diagrammes TGA et DTG des échantillons neuf et vieilli sous enceinte climatique. Nous pouvons noter que le vieillissement qui a été appliqué n'a aucun effet sur le comportement thermique du matériau du fait que les thermo-grammes des échantillons neufs et vieillis sont quasi identiques.

A partir des thermo-grammes TGA et DTG qui ont été réalisés (Figure 45), nous avons établi le Tableau 13 afin de récapituler les résultats de mesure. Nous pouvons ainsi noter que la perte de masse est identique pour les échantillons neufs et vieillis. Ceci signifie que le matériau ne subit pas une perte de ces composants tels que nous avons pu le voir pour le vieillissement thermique.



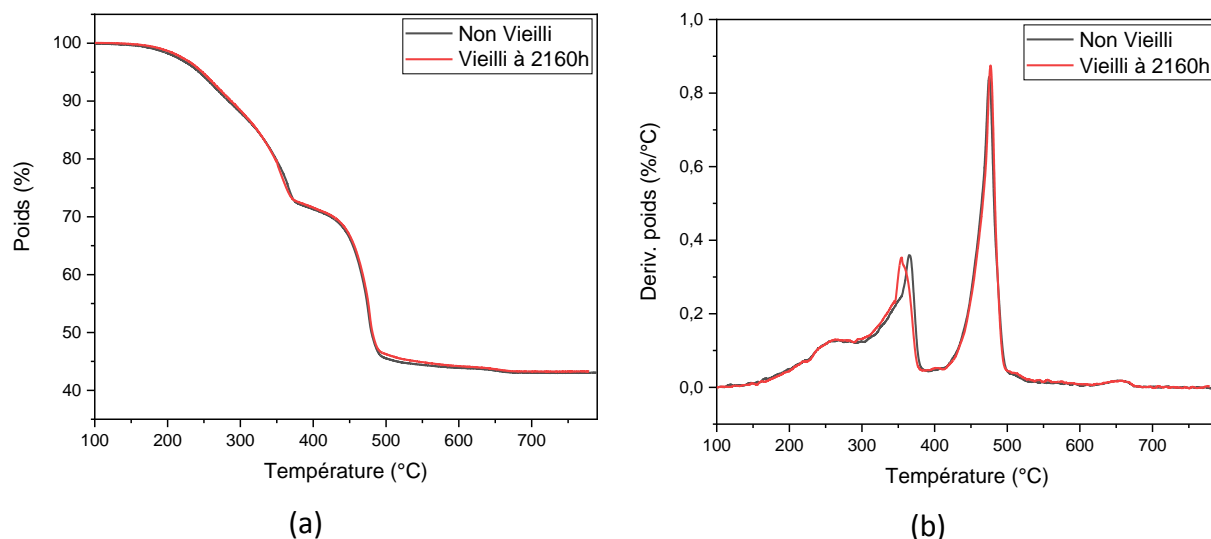


Figure 45: (A) Thermo-gramme TGA; (B) Thermo-gramme DTG d'échantillons neufs et vieillis sous rayonnement ultraviolet.

Tableau 13: Résumé des résultats des mesures TGA & DTG pour les échantillons vieillis sous rayonnement ultraviolet

Echantillon	Température du pic DTG du 1 <sup>er</sup> événement (°C)	Température du début du 1 <sup>er</sup> événement (°C)	1 <sup>ère</sup> perte de masse (%)	Température du pic DTG du 2 <sup>ème</sup> événement (°C)	Température du début du 2 <sup>ème</sup> événement (°C)	2 <sup>ème</sup> perte de masse (%)	Perte de masse totale (%)
Non vieilli	366	129	28	476	392	27	57
1296h de vieillissement	359	124	28	475	390	27	57
2160h de vieillissement	357	134	28	477	392	28	56

## IV.2. ECHELLE MICROSTRUCTURALE

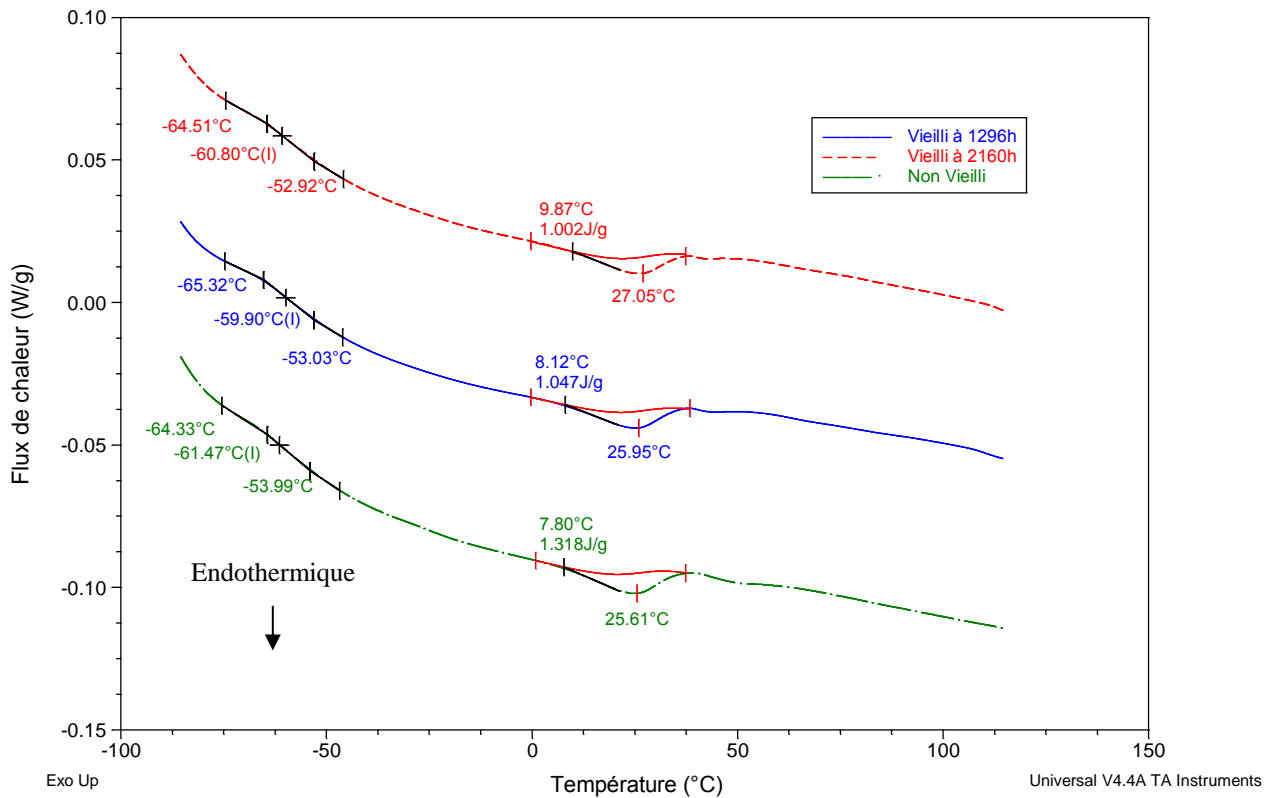
### IV.2.1. LA CALORIMETRIE DIFFERENTIELLE A BALAYAGE (DSC)

A partir de la Figure 46 qui représente les thermo-grammes DSC du premier cycle de chauffe d'échantillons neufs et vieillis sous rayonnement ultraviolet, nous avons résumé les résultats de mesure dans le Tableau 8.

Il apparait ainsi, que le vieillissement sous rayonnement UV n'a pas d'effet sur la température de transition vitreuse mesurée par la méthode DSC. Une légère diminution de sa cristallinité est observée. La perturbation de l'ordre cristallin peut être attribuée à une scission des chaînes accompagnée d'une réticulation [80, 106-109]. Néanmoins, il convient de noter qu'en raison des faibles valeurs de la cristallinité, le caractère amorphe domine dans l'EPDM.

**Tableau 14: Résumé des résultats de mesure DSC pour un EPDM neuf et vieilli sous rayonnement ultraviolet**

Echantillon	$T_g$ (°C)	$T_m$ (°C)	$\Delta H_m$ (J/g)	$\chi$ (%)
Non vieilli	-61	26	1.31	0.45
1296h de vieillissement	-60	26	1.05	0.36
1296h de vieillissement	-60	27	1.00	0.34

**Figure 46: Thermo-grammes DSC du premier cycle d'échauffement d'un EPDM neuf et vieilli sous rayonnement ultraviolet.**

#### IV.2.2. MICROSCOPE ELECTRONIQUE A BALAYAGE (MEB)

La Figure 47 montre les résultats de l'imagerie MEB au cours du vieillissement de l'EPDM étudié sous rayonnement ultraviolet.

A partir des résultats de l'imagerie MEB, nous pouvons noter que le rayonnement UV qui a été appliqué a un effet sur la topographie de la surface du matériau. Des irrégularités apparaissent, ainsi dès 432 heures de vieillissement. Elles deviennent plus importantes au cours de la dégradation. Ce phénomène peut être attribué au décollement de la couche de finition issue du processus de moulage des échantillons. Cette couche est constituée exclusivement de polymère [111]. Elle est substituée, au cours du vieillissement, par une couche composée du polymère et des charges entrant dans la composition du matériau.

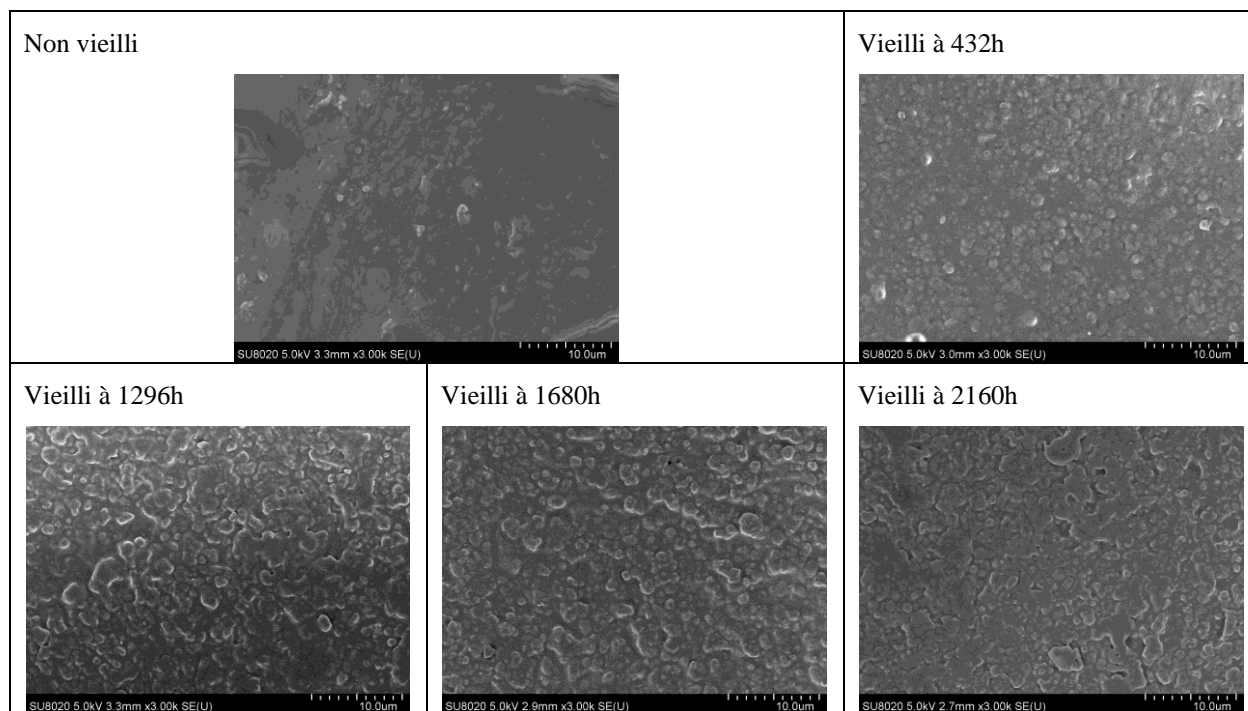


Figure 47: Evolution de la microstructure de Surface d'un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.

#### IV.2.3. SPECTROSCOPIE A RAYONS X A DISPERSION D'ENERGIE

De même que nous l'avons fait pour les échantillons vieillis thermiquement, la technique de la Spectroscopie à rayons X à dispersion d'énergie (EDS) a été utilisée dans cette étude afin d'avoir une idée sur l'étendue des réactions chimiques qui peuvent avoir lieu le long d'une exposition prolongée au rayonnement ultraviolet.

Tableau 15: Résumé des mesures EDS pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet

	C		O		Al		O/C	Al/C
	Poids (%)	Erreur (%)	Poids (%)	Erreur (%)	Poids (%)	Erreur (%)		
Non vieilli	52,2	±0,3	27,5	±0,4	18,9	±0,1	0,52	0,36
432h	28,7	±0,3	46,2	±0,4	23,7	±0,1	1,60	0,82
1296h	19,5	±0,3	47,3	±0,4	29,3	±0,2	2,42	1,50
1728h	19,8	±0,3	51,3	±0,4	26,5	±0,1	2,59	1,33
2160h	17,2	±0,3	49,9	±0,4	29,1	±0,2	2,90	1,69

Le Tableau 15 résume les résultats de mesure obtenus par la technique EDS dans le cas des échantillons vieillis sous enceinte climatique. Il apparaît clairement que les ratios O/C et Al/C connaissent une augmentation significative au cours du vieillissement. Cette augmentation est de 557% pour le ratio O/C et de 469% pour le ratio Al/C. Ces résultats sont en conformité avec ce que nous avons pu observer avec la spectroscopie FTIR. En effet, l'augmentation du rapport O/C est représentative d'une photo-oxydation et une dépolymérisation de l'échantillon [10, 127-130].

L'augmentation du rapport Al/C est, quant à elle, représentative d'une érosion de la surface de l'échantillon tel que nous avons pu le constater à travers l'imagerie MEB.

### IV.3. ECHELLE MACROSCOPIQUE

#### IV.3.1. L'ANALYSE THERMOMECHANIQUE DYNAMIQUE (DMA)

La Figure 48 montre les caractéristiques viscoélastiques d'un EPDM neuf et vieilli sous rayonnement ultraviolet. La température correspondant au maximum du pic du facteur d'amortissement ( $\text{Tan } \delta$ ) est considérée comme étant la température de transition vitreuse  $T_g$ . Nous pouvons noter que cette dernière augmente légèrement avec le temps de vieillissement. La diminution de l'amplitude des pics observés et l'augmentation de  $T_g$  sont causées par la réticulation du matériau [112]. L'augmentation de  $T_g$  peut être également expliquée par une polarité plus importante suite à une scission des chaînes d'où une attraction moléculaire plus importante. Il est à noter que la technique DMA est plus sensible en termes de mesure de la valeur de la température de transition vitreuse comparativement à la méthode DSC. La méthode DMA est donc plus adaptée pour le cas des échantillons dont la dégradation se situe sur leur surface.

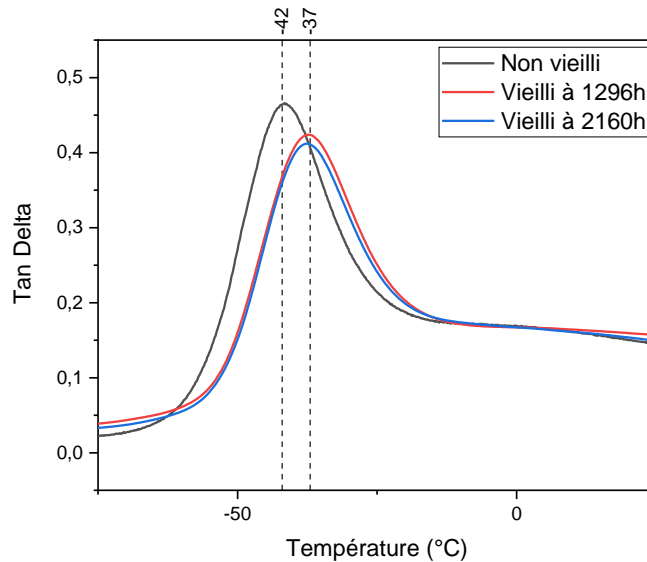


Figure 48: Thermo-gramme du facteur d'amortissement pour des échantillons neufs et vieillis sous rayonnement ultraviolet.

#### IV.3.2. MESURE DE LA DURETE

La Figure 49 montre l'évolution de la dureté de l'EPDM le long de son vieillissement sous rayonnement ultraviolet. Chaque point représente la moyenne arithmétique de neuf valeurs expérimentales (Trois échantillons avec trois mesures pour chaque échantillon) ainsi que leur écart type (E.T).

Nous pouvons noter, à partir des résultats obtenus, que le vieillissement appliqué a pour effet d'augmenter la dureté du matériau. Nous pouvons noter que cette augmentation a lieu dès le

début de la dégradation et se stabilise à une valeur de Shore A égale à 75. En considérant l'augmentation de  $T_g$  mesurée par la technique DMA, nous pouvons expliquer l'augmentation de la dureté par une réticulation du matériau [4].

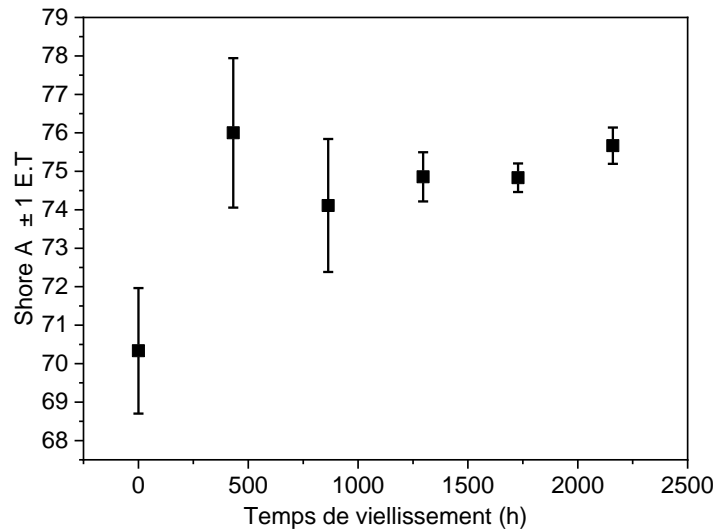


Figure 49: Evolution de la dureté en fonction du temps pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.

### IV.3.3. EVALUATION DE L'HYDROPHOBICITE

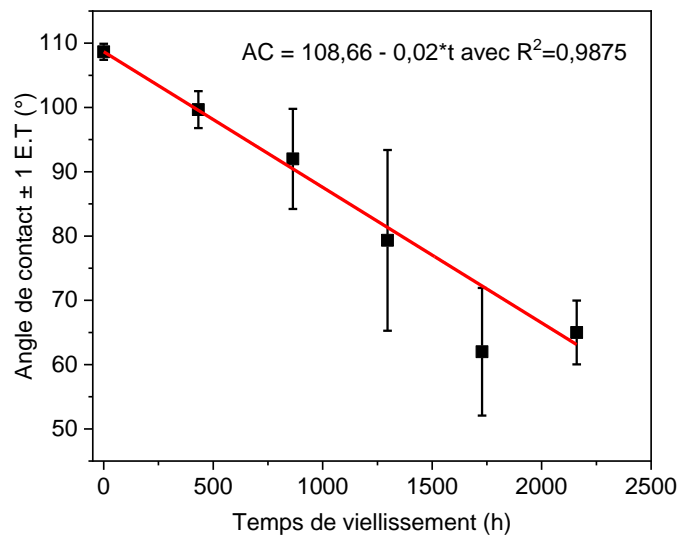


Figure 50: Evolution de l'angle de contact en fonction du temps pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.

La Figure 50 montre l'évolution de l'angle de contact (AC) le long du vieillissement de l'EPDM en enceinte climatique. Chaque point représente la moyenne arithmétique de trois valeurs expérimentales ainsi que leur écart type (E.T). Sur la base des mesures expérimentales, une droite d'ajustement a été tracée.

Il apparaît, à partir des mesures qui ont été réalisées, que l'angle de contact diminue de manière uniforme en fonction du temps de vieillissement en passant d'une valeur de  $108^\circ$  pour un échantillon non vieilli jusqu'à une valeur de  $65^\circ$  après 2160h de vieillissement sous rayonnement ultraviolet. Cette diminution peut être attribuée à la photo-oxydation de l'EPDM qui génère sur la surface de l'échantillon des groupes polaires tel que le carbonyle [111]. Un lien peut être fait avec la mesure de la résistivité surfacique qui est affectée par les mêmes produits d'oxydation.

#### IV.3.4. ANALYSE DE LA COLORIMETRIE

La Figure 51 montre la variation de  $\Delta E$  en fonction du temps de vieillissement d'un EPDM soumis à une dégradation photochimique. La valeur de référence utilisée pour le calcul de  $\Delta E$  est la couleur d'un échantillon non vieilli. La valeur de  $\Delta E$  est, donc, nulle à l'état initial de dégradation.

Chaque point de la Figure 51 représente la moyenne arithmétique de trois valeurs expérimentales ainsi que leur écart type (E.T). Il apparaît, à partir des résultats obtenus, que les rayonnements UV engendrent un changement de couleur du matériau. Tel que noté lors de la mesure de la dureté, nous constatons que ce changement de couleur a lieu très tôt. Il est détecté dès le premier prélèvement qui a été opéré à 432 heures de vieillissement. Il s'en suit une stabilisation où  $\Delta E$  reste pratiquement le même jusqu'à 2160 heures de vieillissement.

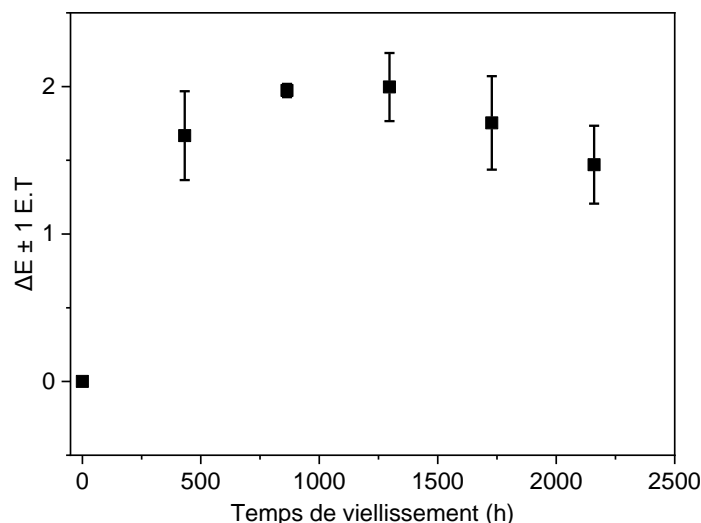


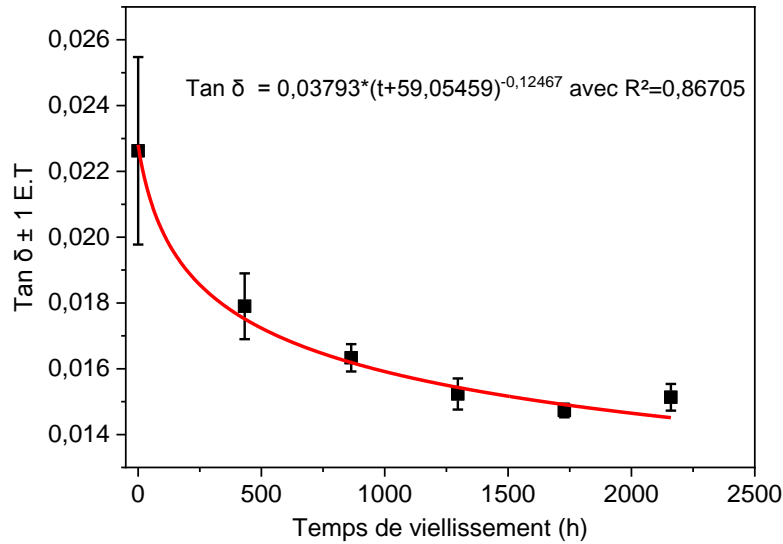
Figure 51: Evolution du changement de couleur dans l'espace CIE-L\*a\*b\* en fonction du temps pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.

#### IV.3.5. ANALYSE ELECTRIQUE

##### IV.3.5.1. MESURE DU FACTEUR DE PERTE DIELECTRIQUE

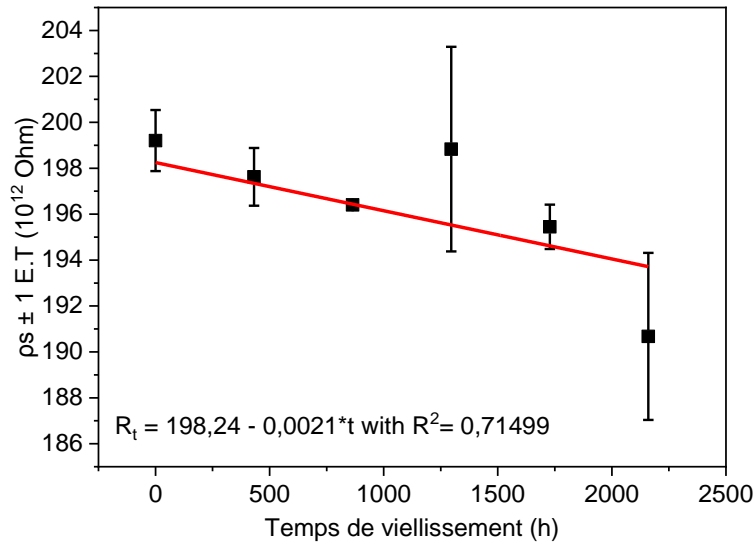
L'évolution du facteur de perte diélectrique en fonction du temps de vieillissement est indiquée dans la Figure 37. Chaque point représente la moyenne arithmétique de trois valeurs expérimentales ainsi que leur écart type (E.T). Les courbes d'ajustement ont été obtenues par la méthode de régression sur la base des données expérimentales.

Nous constatons que  $\text{Tan } \delta$  diminue le long du vieillissement. Dans une première phase, nous constatons une variation abrupte où le facteur de perte diélectrique perd 30% de sa valeur dans les 1000 heures de vieillissement. Une deuxième phase de variation s'en suit où  $\text{Tan } \delta$  se stabilise.



**Figure 52: Evolution du facteur de perte diélectrique en fonction du temps pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.**

#### IV.3.5.2. MESURE DE LA RESISTIVITE SURFACIQUE



**Figure 53: Evolution de la résistivité surfacique en fonction du temps pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.**

La Figure 53 indique la variation de la résistivité d'un EPDM au cours d'un vieillissement sous rayonnement ultraviolet. Chaque point représente la moyenne arithmétique de trois valeurs expérimentales ainsi que leur écart type (E.T).

La droite d'ajustement a été obtenue par la méthode de régression sur la base des données expérimentales.

Il apparait, à partir des résultats de mesure, que la résistivité surfacique diminue d'une manière uniforme au cours du vieillissement sous rayonnement UV. Cette diminution peut être attribuée à la photo-oxydation qui génère de l'hydroxyle responsable de l'augmentation de la conductivité du matériau.

#### IV.4. EVALUATION DE LA CORRELATION ENTRE LES PARAMETRES REPRESENTATIFS DU VIEILLISSEMENT

Les résultats de la caractérisation de l'EPDM vieilli en enceinte climatique nous permettent de mettre en lumière certains paramètres représentatifs de ce type de dégradation. Dans le cadre de notre étude nous avons évalué la corrélation qui peut avoir lieu entre ces paramètres en calculant le coefficient de Kendall ( $\tau_k$ ) qui mesure la corrélation de rang entre deux variables (Tableau 11). La p-valeur a été calculée afin d'évaluer la significativité de la corrélation (Tableau 12).

**Tableau 16: Récapitulatif des coefficients de corrélation de rang de Kendall pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet**

$\rho_s$	FTIR (CI)	CA	Color Change	Shore A	EDS (O/C)	EDS (AI/C)	
0,59	-0,73	<b>0,99</b>	-0,33	-0,19	-0,8	-0,6	<b>Tan <math>\delta</math></b>
	<b>-0,86</b>	0,59	0,06	-0,33	-0,8	-0,6	<b><math>\rho_s</math></b>
		-0,73	0,06	0,19	<b>1</b>	0,8	<b>FTIR (CI)</b>
			-0,33	-0,19	-0,8	-0,6	<b>CA</b>
				0,06	0,2	0,4	<b>Color change</b>
					0,2	0,4	<b>Shore A</b>
						0,8	<b>EDS (O/C)</b>

**Tableau 17: Récapitulatif des p-valeurs pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet**

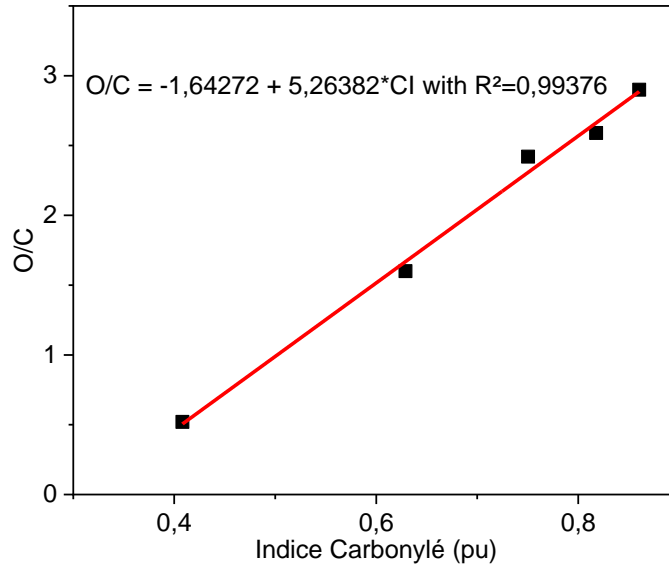
$\rho_s$	FTIR (CI)	CA	$\Delta E$	Shore A	EDS (O/C)	EDS (AI/C)	
0,132	0,060	<b>0,008</b>	0,452	0,707	0,086	0,220	<b>Tan <math>\delta</math></b>
	<b>0,024</b>	0,132	1	0,452	0,086	0,220	<b><math>\rho_s</math></b>
		0,060	1	0,707	<b>0,027</b>	0,086	<b>FTIR (CI)</b>
			0,452	0,707	0,086	0,220	<b>CA</b>
				1	0,806	0,462	<b>Color change</b>
					0,806	0,462	<b>Shore A</b>
						0,086	<b>EDS (O/C)</b>

A partir des valeurs de  $\tau_k$  et de p-valeur, nous pouvons noter 3 paires de paramètres significatifs du vieillissement ((IC,  $R_s$ ), (AC, Tan  $\delta$ ) et (O/C, IC)) qui sont fortement corrélés. Deux autres

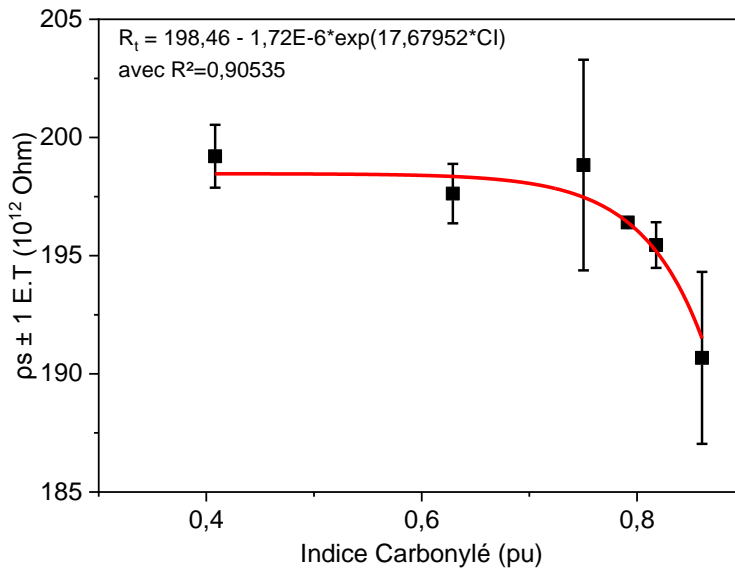


paires ((IC, Tan  $\delta$ ) et (AC, IC)) présentent une forte corrélation, néanmoins un plus grand nombre de mesures et requis pour améliorer la significativité de la corrélation.

Nous pouvons noter à partir de la Figure 54 que l'indice carbonylé d'un EPDM soumis à un vieillissement sous rayonnement UV présente une liaison linéaire positive avec le ratio O/C. Les mesures expérimentales ont permis de tracer une droite de régression.



**Figure 54: Courbe de liaison de l'indice carbonylé avec le ratio O/C pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.**



**Figure 55: Courbe de liaison de l'indice carbonylé avec la résistivité surfacique pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.**

La Figure 55 montre une liaison linéaire négative entre la résistivité surfacique et l'indice carbonylé. Nous pouvons noter que la résistivité du matériau ne commence à chuter qu'à partir d'un certain seuil de l'indice carbonylé.

Il apparaît à partir des résultats illustrés dans la Figure 56 qu'une liaison négative existe entre l'angle de contact du matériau et le facteur de perte. Une courbe de régression a été tracée à partir des mesures expérimentales en appliquant un modèle exponentiel.

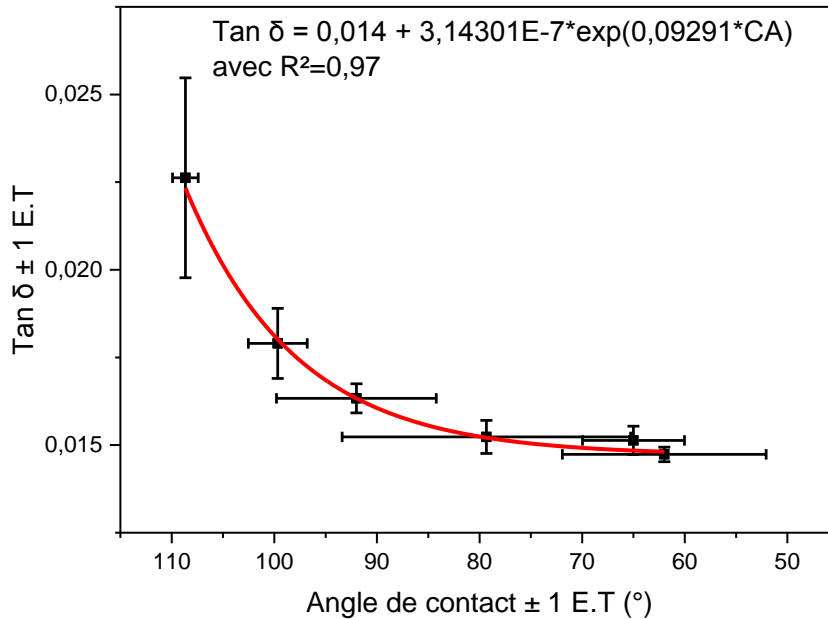


Figure 56: Courbe de liaison de l'angle de contact avec facteur de perte diélectrique pour un EPDM vieilli sous rayonnement ultraviolet.

## IV.5. CONCLUSION

Les principaux mécanismes observés au cours du vieillissement sous rayonnement ultraviolet sont la photo-oxydation qui entraîne une dépolymérisation du matériau. Dans une moindre mesure, l'EPDM connaît une réticulation. Nous avons pu noter, également, une érosion de la surface des échantillons.

Suite à la dégradation appliquée, la détection du changement de  $T_g$  n'a pas été possible par la méthode DSC alors que la transition thermomécanique mesurée par analyse DMA a permis de mettre en évidence un changement de température de transition vitreuse. La méthode DMA s'avère, ainsi, plus appropriée pour l'analyse d'échantillons dégradés en surface comparativement à la technique DSC.

Il est apparu que le vieillissement sous rayonnement ultraviolet à température contrôlée n'engendre pas de perte des composants volatils tels qu'il a été possible de constater lors du vieillissement thermique.

Le vieillissement sous rayonnement ultraviolet de l'EPDM est accompagné par la génération de groupes carbonylés (C=O). Leur augmentation tend à être moins importante après 1000 heures de vieillissement. La mesure de la résistivité surfacique ( $\rho_s$ ) a montré qu'elle est fortement corrélée à l'indice carbonylé (IC). Il est apparu que  $\rho_s$  reste stable jusqu'à une valeur critique de IC égale à 0.75 à partir de laquelle nous avons constaté que la résistivité surfacique diminue.

Nous avons pu observer une liaison linéaire entre l'indice carbonylé mesuré avec la spectroscopie FTIR et le ratio O/C mesuré par la méthode EDS. Il apparaît, ainsi, qu'une mesure d'une seule de ces caractéristiques permet la détermination de l'autre propriété.

## **ÉVALUATION DE L'IMPACT DU VIEILLISSEMENT D'UN ISOLATEUR COMPOSITE SUR LA DISTRIBUTION DU CHAMP ÉLECTRIQUE**

---

Dans ce chapitre, nous allons procéder au calcul de la distribution du champ électrique au voisinage d'un isolateur composite. Les effets du vieillissement du revêtement de l'isolateur sur la distribution du champ électrique le long de la ligne de fuite seront analysés. Afin d'atténuer ces effets, un algorithme d'optimisation utilisé comme outil d'aide à la conception des isolateurs composites sera proposé. Cet outil a pour objectif d'optimiser les dimensions des différents composants de l'isolateur composite afin de minimiser l'effet du vieillissement de son revêtement isolant sur la distribution du champ électrique le long de sa ligne de fuite.

## V.1. INTRODUCTION

Les matériaux polymères sont, de plus en plus, utilisés dans les isolations à haute tension tels que les isolateurs de lignes aériennes, les isolateurs de traversée ainsi que les terminaisons de câbles. L'élargissement du champ d'application de ce type de matériau est dû aux performances qu'il procure en termes de réduction du poids et d'une meilleure résistance à la pollution et au vandalisme [15].

Durant sa durée de vie, le polymère est soumis à des contraintes environnementales qui engendrent des altérations pouvant affecter les performances globales de l'isolation. L'évaluation de l'impact de ces variations est donc nécessaire afin de garantir une bonne conception de l'isolateur. Etant donné que les performances de l'isolateur sont régies par la distribution du champ électrique dans son voisinage [131], la connaissance de cette distribution requiert une importance fondamentale.

Dans le cas des isolateurs composites, le polymère est utilisé en grande partie pour ses propriétés hydrophobes lui permettant d'atténuer le courant de fuite responsable de la formation de bandes sèches qui engendrent, à leur tour, la formation de décharges partielles. Ces dernières détériorent la surface du revêtement par le phénomène d'érosion et de cheminement. Il devient ainsi évident que la préservation des performances de l'isolateur passe par une limitation de son courant de fuite.

Etant donné que le courant passant le long de la surface de l'isolateur est régi principalement par le champ tangentiel, ce dernier se doit d'être évalué durant la conception de l'isolateur afin d'améliorer au mieux sa durée de vie.

En raison de la difficulté de la mesure du champ électrique qui nécessite des moyens relativement importants, son calcul grâce à des outils numériques adaptés est un bon compromis entre précision et économie de temps et de moyens [132]. Cette approche représente un outil efficace dans la conception des isolateurs composites [133].

## V.2. EFFETS DU VIEILLISSEMENT SUR LE REVETEMENT DES ISOLATEURS COMPOSITES

A travers les chapitres précédents nous avons pu voir l'impact du vieillissement sur le revêtement polymère des isolateurs composites. Nous avons mis en évidence plusieurs paramètres significatifs du vieillissement pour chacune des contraintes qui ont été appliquées.

Nous nous intéresserons dans le cadre de ce chapitre aux paramètres qui sont susceptibles d'avoir un effet sur le courant de fuite transitant par la surface du revêtement de l'isolateur. Les paramètres faisant l'objet de notre intérêt sont la permittivité relative et l'hydrophobicité du revêtement de l'isolateur.

La permittivité relative est déterminante dans les phénomènes aux interfaces notamment ceux relatifs à la distribution du champ électrique sur la surface de l'isolant. A travers les résultats expérimentaux qui ont été obtenus dans cette étude et ceux présentés dans d'autres travaux [26, 134], il a été possible de noter que la permittivité relative du matériau augmente avec son vieillissement thermique. En effet, l'augmentation de la densité de réticulation de l'élastomère a pour effet d'augmenter la constante diélectrique du matériau. Ce phénomène peut être également expliqué par le fait que le matériau se contracte au cours de son vieillissement, sa capacité augmente, provoquant ainsi une augmentation de la constante diélectrique.

Lors d'une humidification de l'isolateur, la triple jonction eau-air-polymère formée par les gouttelettes déposées sur la surface du revêtement génère une augmentation du champ électrique au niveau de ladite jonction. L'intensité du champ électrique résultant dépend de l'angle que forme la gouttelette avec l'isolant. L'hydrophobicité du matériau est, ainsi, déterminante dans la proportion que peut prendre le champ électrique à la surface de l'isolant. A travers les résultats expérimentaux de cette étude et d'après la littérature [6, 111], il a été montré que l'angle de contact que forme une gouttelette d'eau avec le revêtement diminue au cours de son vieillissement. Ce phénomène peut être expliqué par le fait que les produits de l'oxydation d'un élastomère rendent la surface du matériau hydrophile d'où une réduction de l'angle de contact.

### **V.3. MODELISATION PAR ELEMENTS FINIS**

Dans ce chapitre, une simulation basée sur la méthode des éléments finis sera réalisée afin de calculer la distribution du champ le long de la ligne de fuite d'un isolateur. Une compréhension approfondie de l'aspect mathématique de notre approche ne fait pas partie des objectifs de cette étude. Ceci a été suffisamment détaillé dans divers travaux [135, 136].

Le calcul du champ réalisé dans cette étude a été effectué à l'aide du logiciel commercial COMSOL. La simulation a eu lieu en trois étapes ; le paramétrage, la résolution et l'exploitation des résultats.

La formalisation du problème physique telle que la structure géométrique, le type du matériau, les conditions aux limites ainsi que les conditions de discrétisation sont définies comme entrées dans l'étape de paramétrage.

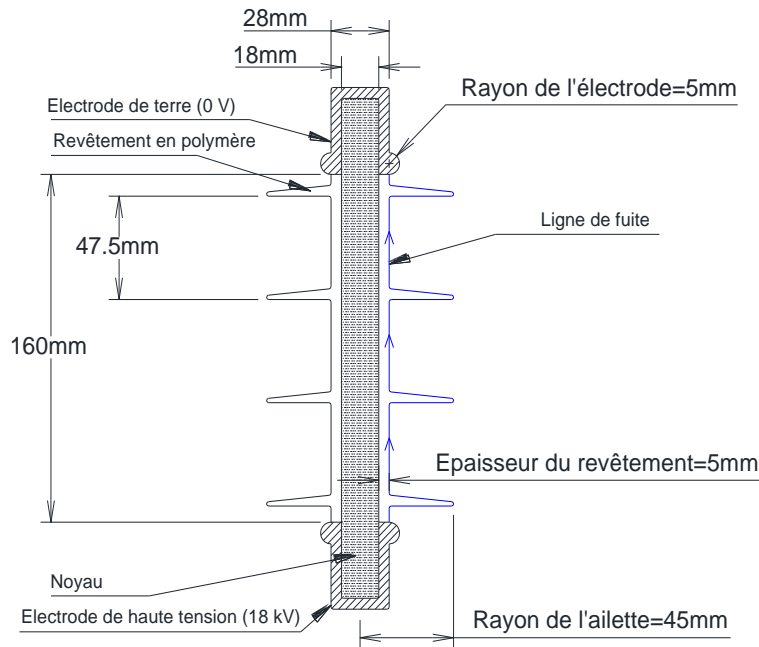
Le modèle mathématique exprimé par des équations différentielles décrivant le phénomène physique est exécuté durant l'étape de résolution.

Enfin, pour l'exploitation des résultats, le logiciel permet à l'utilisateur de réaliser l'acquisition des données dont il a besoin. Cette dernière étape est effectuée à l'aide d'un outil d'interfaçage (LiveLink™) avec le logiciel de calcul MATLAB. Ce dernier permet la mise en place de sous programmes utilisés dans l'acquisition des données et l'optimisation de la conception de l'isolateur.

#### **V.3.1. DESCRIPTION DE L'ISOLATEUR FAISANT L'OBJET DE LA SIMULATION**

L'isolateur faisant l'objet de notre étude est illustré dans la Figure 57. En raison de la forme cylindrique de l'objet d'essai, nous avons opté pour une modélisation en deux dimensions et en axis-symétrique. Ceci permet une économie de temps de calcul tout en préservant la pertinence des résultats. Cette simplification a été traitée par plusieurs auteurs [137, 138] qui ont abouti à la conclusion que la modélisation en deux dimensions est similaire à celle en trois dimensions en termes de résultats de calcul.

La configuration qui a été prise en compte est une forme idéale d'un cas de figure où aucun équipement ou structure ne se trouve dans le voisinage de l'isolateur. Toute structure pouvant causer une distorsion du champ dans le voisinage du modèle simulé n'a pas été considérée.



**Figure 57: Isolateur composite faisant l'objet de cette étude.**

L'isolateur faisant l'objet de notre étude est un isolateur moyenne tension (18kV) composite de type extérieur à revêtement en polymère. L'isolateur a 4 ailettes identiques de 90 mm de diamètre espacées de 47.5mm. L'épaisseur du revêtement est de 5mm avec une longueur de ligne de fuite égale à 390mm.

Les électrodes de l'isolateur sont séparées d'une distance de 160mm. Elles sont fabriquées en alliage d'acier. Elles sont fixées à un noyau en fibre de plastique renforcé (FRP) d'un diamètre de 18mm

### V.3.2. CARACTERISTIQUES DES MATERIAUX

Dans le cadre de notre simulation, chaque composant du modèle faisant l'objet de notre étude (Figure 57) a été défini avec les propriétés du matériau avec lequel il est fabriqué. L'air entourant l'isolateur est considéré comme un milieu faiblement conducteur dont la conductivité est égale à

$1.0 \times 10^{-15}$  S/m. Dans certains cas de figures, nous avons considéré une couche de pollution recouvrant l'isolateur. La permittivité relative de cette couche de pollution a été estimée à 80 étant donné que l'eau constitue sa composante principale. La couche de pollution est considérée homogène et uniformément distribuée le long de la ligne de fuite de l'isolateur avec une épaisseur égale à 150  $\mu\text{m}$ .

Le Tableau 18 ci-dessous résume les propriétés des matériaux composant le modèle de l'isolateur faisant l'objet de notre simulation.

**Tableau 18: Caractéristiques des composants de l'isolateur composite faisant l'objet de cette étude**

Composants de l'isolateur	Matériau	Constante diélectrique ( $\epsilon_r$ )	Conductivité (S/m)
Electrode	Acier	1.0	$5.9 \times 10^{-8}$
Noyau	Fibre de plastique renforcé (FRP)	7.1	$1.0 \times 10^{-14}$
Revêtement	Ethylene-Propylene-Diene Monomère (EPDM)	3-4	$1.0 \times 10^{-14}$
Milieu	Air	1.0	$1.0 \times 10^{-15}$
Couche de pollution (150 $\mu\text{m}$ d'épaisseur)	Eau polluée	80	$5.0 \times 10^{-6}$

### V.3.3. CONDITIONS AUX LIMITES

L'électrode du haut a été mise au potentiel de la terre (0V). L'électrode du bas sera mise sous tension égale à 18kV. Cette tension d'alimentation correspond au maximum auquel peut être exposé ce type d'isolateur [139].

Les contours extérieurs du modèle ont été considérés comme étant isolants avec une absence de source électromagnétique et de passage de courant.

La ligne de symétrie de notre modèle coïncide avec l'axe de révolution de l'isolateur.

### V.3.4. MAILLAGE

La discrétisation de la géométrie consiste à procéder à un découpage du domaine continu en sous domaines. Le choix de la taille des mailles est important. Un compromis doit être établi afin d'assurer une précision de calcul suffisante et un temps de calcul raisonnable. La Figure 58 illustre le maillage qui a été appliqué dans le cadre de notre simulation.

### V.3.5. CONFIGURATION DU MODULE DE RESOLUTION

L'isolateur a été simulé à l'aide du module AC/DC utilisé en régime quasi-statique applicable pour des isolateurs extérieurs à haute tension alimentés à fréquence industrielle [131]. Le



couplage entre le champ magnétique induit et le champ électrique est négligé dans le calcul. Cette approximation peut être représentée par l'expression suivante :

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} = \mathbf{0} \quad (8)$$

En considérant que  $\mathbf{E} = -\nabla V$  et en appliquant la divergence à l'équation de Maxwell-Ampère, nous obtenons la relation suivante :

$$\nabla \cdot \nabla \times \mathbf{H} = \nabla \cdot \left[ \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \right] = \mathbf{0} \quad (9)$$

Avec  $\mathbf{J}$  et  $\frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}$  représentent respectivement la densité du courant de conduction ( $\mathbf{J} = \sigma \mathbf{E}$ ) et la densité du courant de déplacement ( $\mathbf{D} = \epsilon_r \epsilon_0 \mathbf{E}$ ).

Le logiciel utilisé procède à la résolution de l'équation (9) afin d'obtenir la distribution du champ et de la tension.

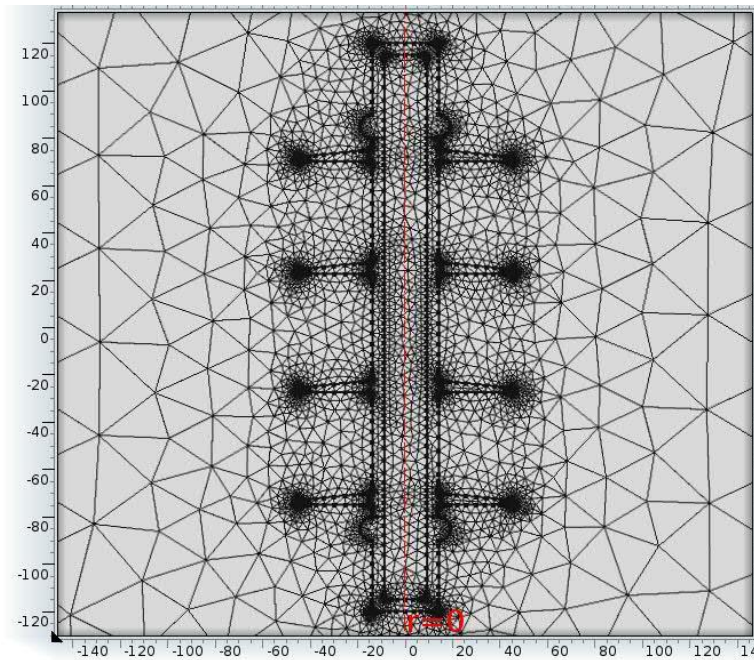


Figure 58: Maillage appliqué au modèle faisant l'objet de la simulation.

## V.4. SIMULATION ET INTERPRETATIONS DES RESULTATS

A partir du modèle défini ci-dessus, nous allons présenter dans la suite de ce travail les résultats de calcul pour différents cas de figures en termes d'état de surface du revêtement de l'isolateur.

Le but de cette étude est d'évaluer l'impact du vieillissement de l'isolateur sur son courant de fuite. Sachant que cette grandeur est régie principalement par le champ électrique tangentiel

( $|E_T|$ ), nous allons nous référer à la valeur maximale que peut atteindre ce dernier ( $|E_{T \text{ Max}}|$ ) pour la quantification de l'effet du vieillissement de l'isolateur.

Afin d'identifier l'effet du vieillissement sur les différentes régions de la ligne de fuite de l'isolateur, nous avons défini les zones indiquées dans la Figure 59. Le champ électrique sera, donc, calculé pour chacune de ces dites zones.

Pour mieux évaluer l'impact du vieillissement sur la distribution du champ électrique, nous introduisons dans la suite de ce travail la notion de facteur d'altération du champ électrique sous l'effet du vieillissement ( $F_A$ ). Cette grandeur représente le ratio de  $|E_{T \text{ Max}}|$  après vieillissement sur  $|E_{T \text{ Max}}|$  avant vieillissement.

$$F_A = |E_{T \text{ Max}} \text{ Après vieillissement}| / |E_{T \text{ Max}} \text{ Avant vieillissement}| \quad (10)$$

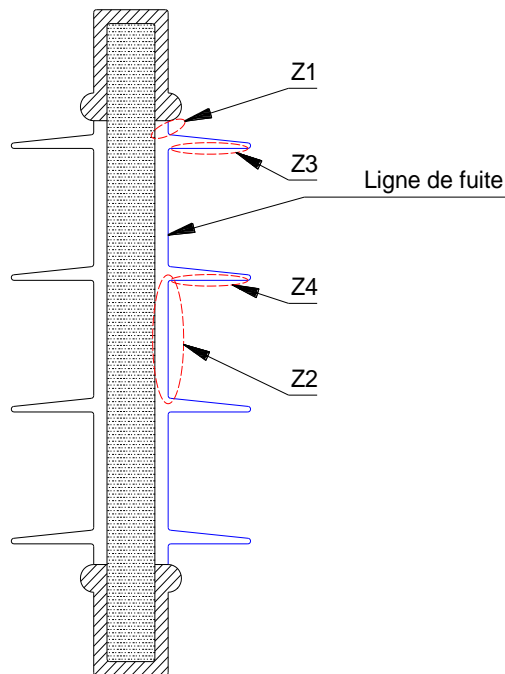


Figure 59: Localisation des zones faisant l'objet d'un calcul de champ électrique.

#### V.4.1. INFLUENCE DE LA VARIATION DE LA PERMITTIVITE DIELECTRIQUE DU REVETEMENT DE L'ISOLATEUR SUR LA DISTRIBUTION DU CHAMP ELECTRIQUE

Comme indiqué précédemment, le vieillissement du revêtement de l'isolateur constitué d'un élastomère a pour effet d'engendrer l'augmentation de sa permittivité diélectrique ( $\epsilon_r$ ). Ainsi, nous verrons dans la suite de ce travail, l'effet de la variation de  $\epsilon_r$  sur la distribution du champ au voisinage d'un isolateur mis sous tension.

Différents états de surface du revêtement seront étudiés afin de prendre en compte les contraintes environnementales auxquelles est soumis l'isolateur durant son fonctionnement. Nous allons,

ainsi, étudier le cas d'un isolateur propre, de celui recouvert d'une couche de pollution et de celui recouvert de gouttelettes d'eau.

#### V.4.1.1. COMPORTEMENT D'UN ISOLATEUR AVEC UNE SURFACE PROPRE

Dans un cas idéal, l'isolateur est propre et sec. Il n'est pas recouvert d'une couche de pollution pouvant affecter la distribution du champ le long de sa ligne de fuite.

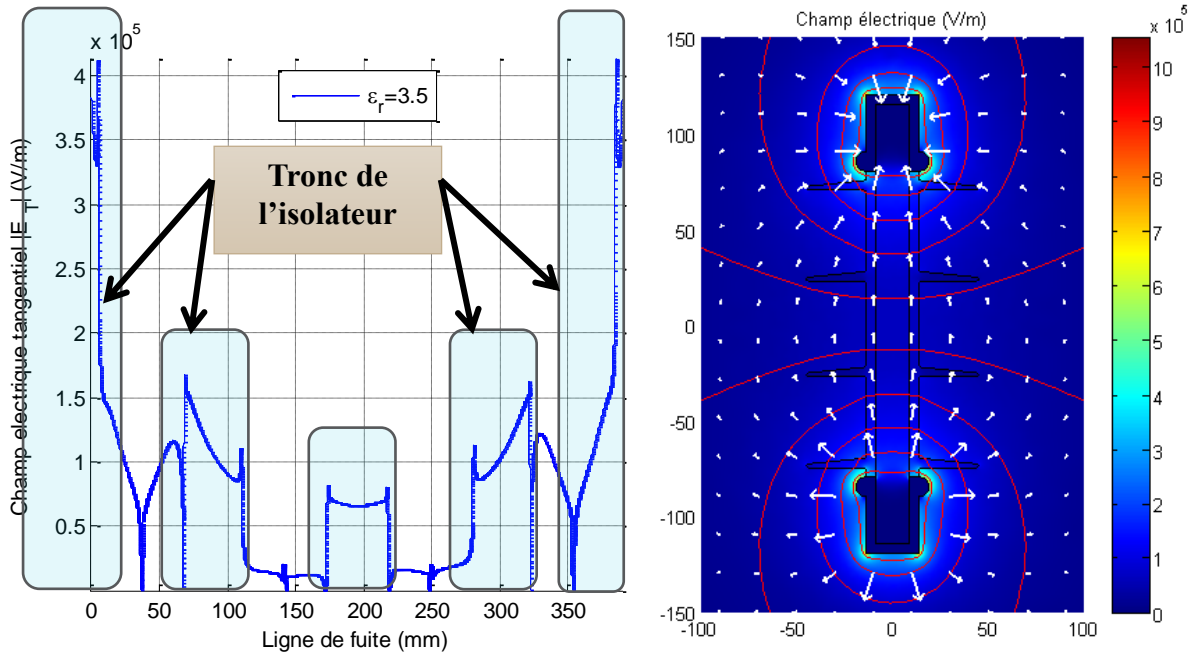


Figure 60: distribution du champ électrique généré par un isolateur propre.

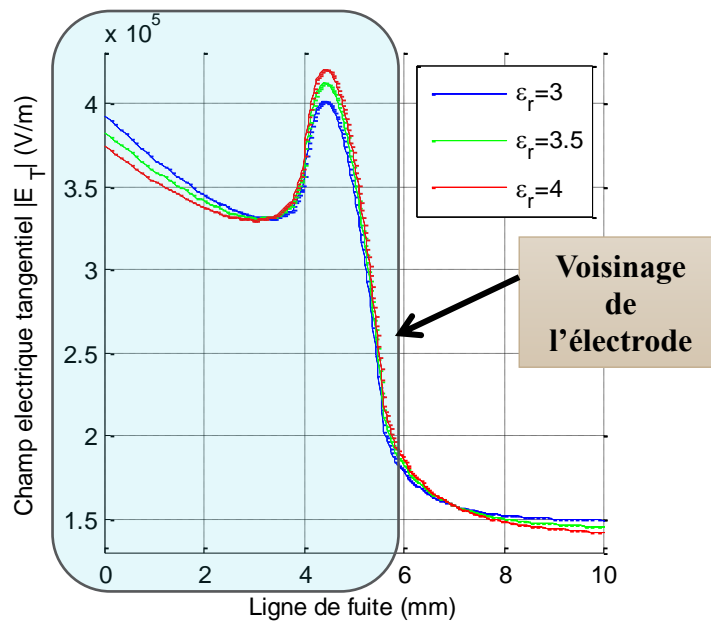


Figure 61: distribution du champ tangentiel le long de la ligne de fuite de l'isolateur au voisinage de l'électrode d'un isolateur propre.

La Figure 60 montre la distribution du champ tangentiel le long de la ligne de fuite pour le cas d'un isolateur non pollué. Nous pouvons constater que le champ tangentiel le long de la ligne de fuite passe par des maximums correspondant au fût de l'isolateur dont la surface est perpendiculaire aux lignes équipotentielles. Les zones à faible champ tangentiel correspondent aux ailettes de l'isolateur dont la surface est parallèle à ces dites lignes.

Nous pouvons noter que la zone Z1 telle que définie dans la Figure 59 concentre la plus grande intensité du champ tangentiel. D'autres pics apparaissent au niveau des jonctions du tronc et des ailettes de l'isolateur. La connaissance de la valeur des pics observés est, ainsi, déterminante dans l'évaluation du comportement de l'isolateur.

La Figure 61 et la Figure 62 montrent l'effet de la permittivité relative sur le champ tangentiel au niveau de la zone Z1 et la zone Z2 respectivement. Il est possible de noter que le vieillissement du revêtement qui se traduit par l'augmentation de la valeur de  $\epsilon_r$  a pour effet d'augmenter la valeur du champ maximal observé d'où une augmentation du courant de fuite.

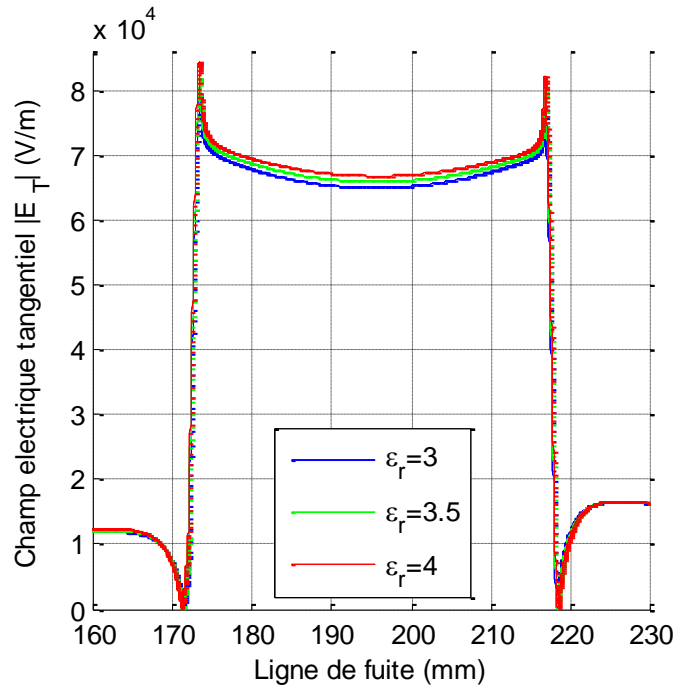


Figure 62: distribution du champ tangentiel le long de la ligne de fuite d'un isolateur propre au niveau de la zone Z2.

Tel qu'illustré dans la Figure 63, nous pouvons noter que le vieillissement du revêtement a pour conséquence de voir la valeur de  $E_{T \max}$  augmenter pour la plupart des zones de la ligne de fuite de l'isolateur. Ainsi, la Figure 64 montre que le facteur d'altération ( $F_A$ ) augmente avec le vieillissement du revêtement pour la plupart des zones de la ligne de fuite.

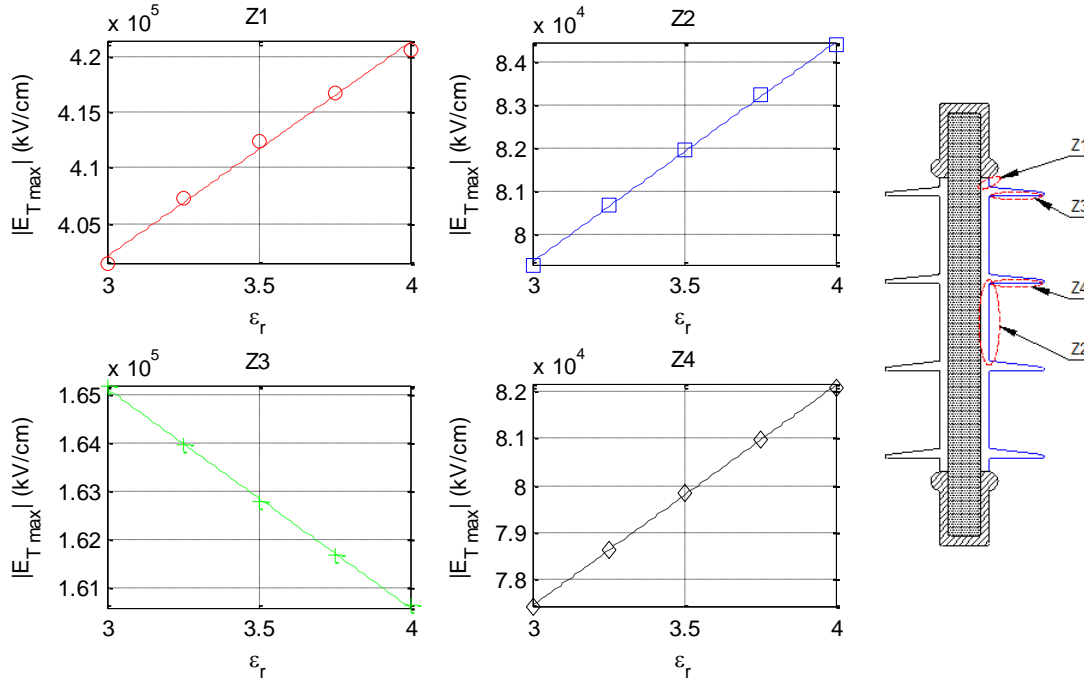


Figure 63: Variation du champ maximal dans les diverses zones de l'isolateur en fonction de la valeur de la permittivité de son revêtement.

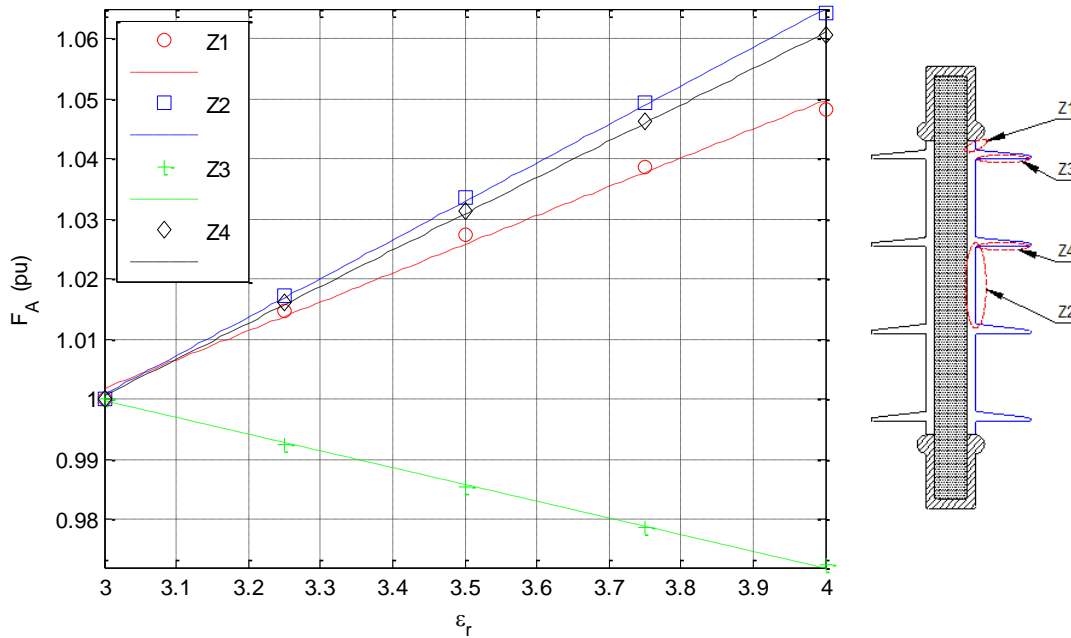


Figure 64: Variation du facteur d'altération ( $F_A$ ) dans les diverses zones de l'isolateur en fonction de la valeur de la permittivité de son revêtement.

### V.4.1.2. COMPORTEMENT D'UN ISOLATEUR AVEC UNE SURFACE POLLUEE

L'exposition de l'isolateur aux conditions environnementales d'exploitation implique la contamination de sa surface par une couche de pollution. Le cas d'un isolateur recouvert par une couche de pollution uniforme et homogène sera, ainsi, traité dans cette étude.

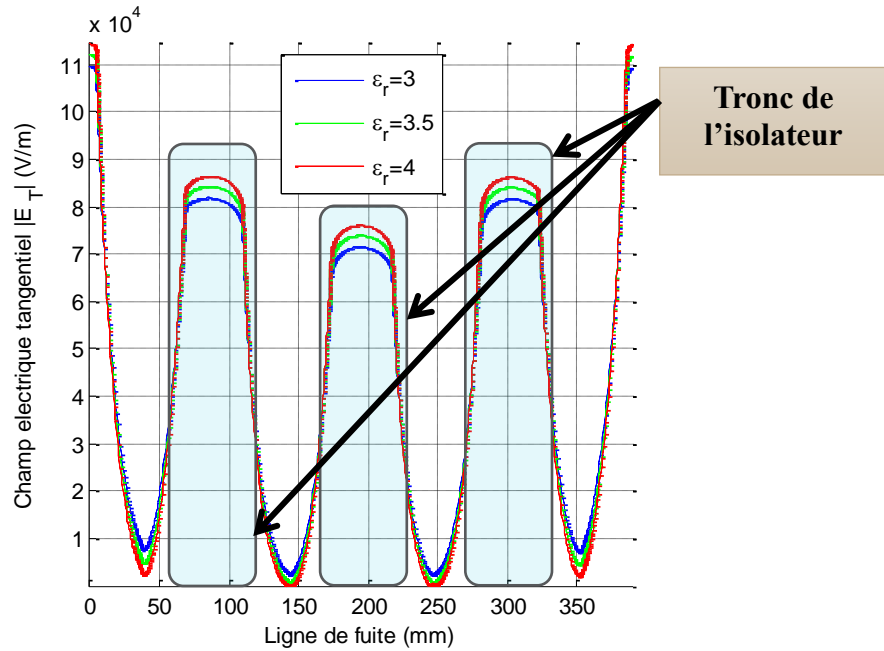


Figure 65: Distribution du champ électrique tangentiel généré par un isolateur recouvert d'une pollution uniforme avec une conductivité  $\sigma=5.10^{-6}$  S/m.

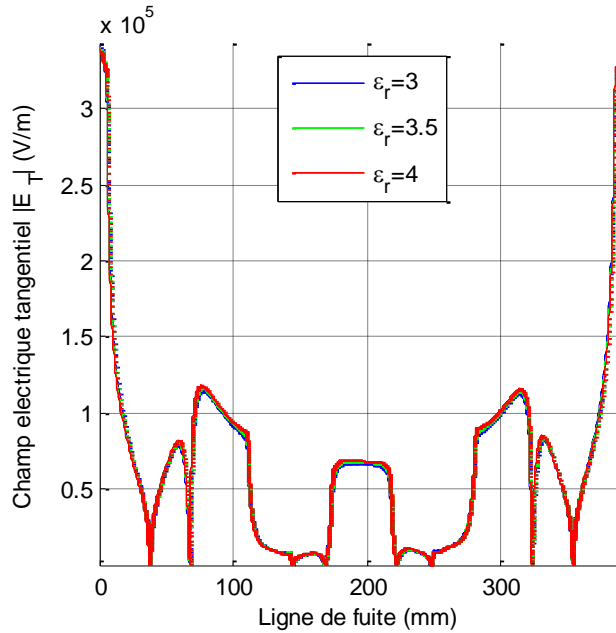


Figure 66: Distribution du champ électrique tangentiel le long de la ligne de fuite de l'isolateur dans le cas d'une pollution uniforme avec une conductivité  $\sigma=2.10^{-7}$  S/m.

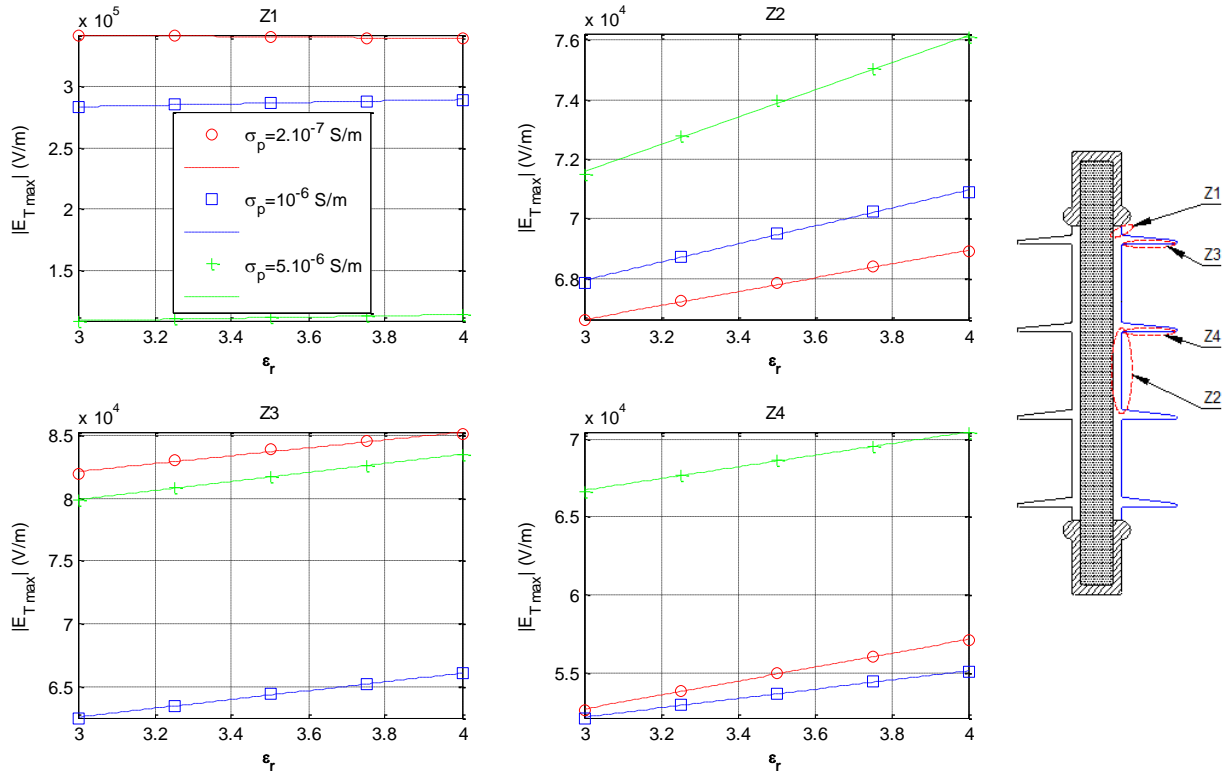


Figure 67: Variation du champ maximal dans les diverses zones de l'isolateur en fonction de la valeur de la permittivité de son revêtement pour différentes valeurs de la conductivité de la couche de pollution.

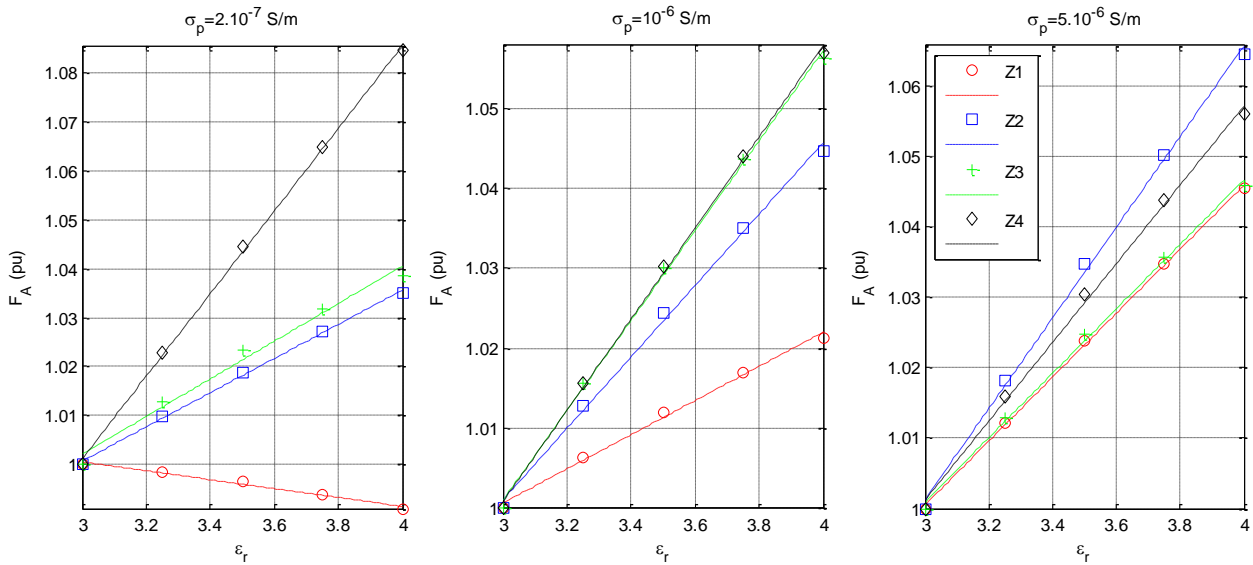


Figure 68: Variation du facteur d'altération ( $F_A$ ) dans les diverses zones de l'isolateur en fonction de la valeur de la permittivité de son revêtement pour différentes valeurs de la conductivité de la couche de pollution.

Nous nous attacherons à évaluer l'effet de la variation de la constante diélectrique dans le cas de la dite contamination. L'effet de la conductivité de la couche de pollution sera pris en compte dans notre évaluation.

En comparant les distributions du champ tangentiel pour le cas d'une conductivité de la couche de pollution  $\sigma$  égale à  $5.10^{-6}$  S/m et à  $2.10^{-7}$  S/m illustrées respectivement dans la Figure 65 et la Figure 66, nous pouvons noter que l'augmentation de la conductivité de la couche de pollution a pour effet d'atténuer l'amplitude des pics d'intensité du champ électrique.

A travers la Figure 67, nous pouvons constater que le vieillissement du revêtement de l'isolateur qui se traduit par l'augmentation de  $\epsilon_r$  a pour effet d'augmenter  $E_{T_{Max}}$  pour la plupart des zones de la ligne de fuite. Nous pouvons noter que la valeur de la conductivité de la couche de pollution agit différemment sur l'évolution de  $E_{T_{Max}}$  en fonction de la zone concernée.

Néanmoins, en considérant la zone Z1 qui présente les plus grandes valeurs du champ tangentiel, nous constatons que l'augmentation de la conductivité de la couche de pollution a pour effet de diminuer l'intensité du champ observé.

Suite au calcul du facteur d'altération en fonction de la permittivité du revêtement et de la conductivité de la couche de pollution tel qu'illustré dans la Figure 67, nous pouvons constater que  $F_A$  augmente au cours du vieillissement du revêtement pour la plupart des zones de la ligne de fuite de l'isolateur quelle que soit la valeur de la conductivité de la couche de pollution.

#### V.4.1.3. COMPORTEMENT D'UN ISOLATEUR AVEC DES GOUTTELETTES D'EAU SUR SA SURFACE

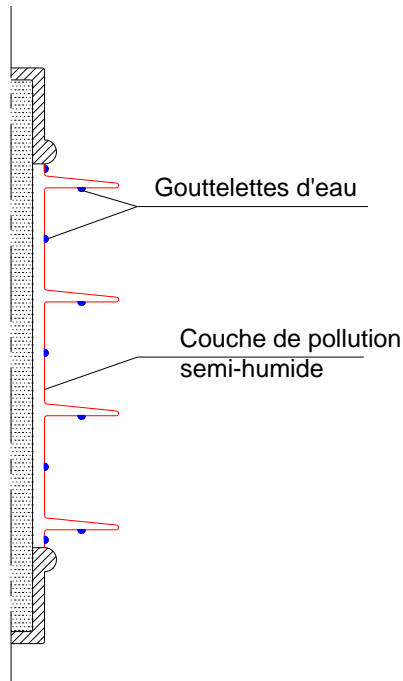


Figure 69: Configuration des gouttelettes recouvrant l'isolateur.



L'effet de la variation de la permittivité relative sur la distribution du champ électrique d'un revêtement recouvert de gouttelettes d'eau (Figure 69) sera traité dans le cadre de cette étude. Les gouttelettes auront un volume de  $7\text{mm}^3$  et un angle de contact de  $90^\circ$ . Le volume de la gouttelette a été appliqué sur la base d'études équivalentes traitant du calcul du champ électrique dans le voisinage d'un isolateur composite [140, 141]. L'angle de contact qui a été appliqué est d'un EPDM au début de sa mise en service. Une couche de pollution semi-humide recouvrera la partie restante du revêtement.

Nous pouvons noter à travers la Figure 70, Figure 71 et la Figure 72 que la présence de gouttelettes sur la surface de l'isolateur cause des sur-intensités du champ tangentiel au niveau de la triple jonction eau-air-polymère formée par les gouttelettes. Il est à noter que ces pics représentent le maximum du champ tangentiel pour chacune des zones concernées.

A travers la Figure 73, nous pouvons noter que le champ tangentiel maximal augmente avec l'augmentation de la permittivité relative. Le facteur d'altération  $F_A$  illustré dans la Figure 74 augmente à son tour pour toutes les zones de la ligne de fuite lors du vieillissement du revêtement de l'isolateur.

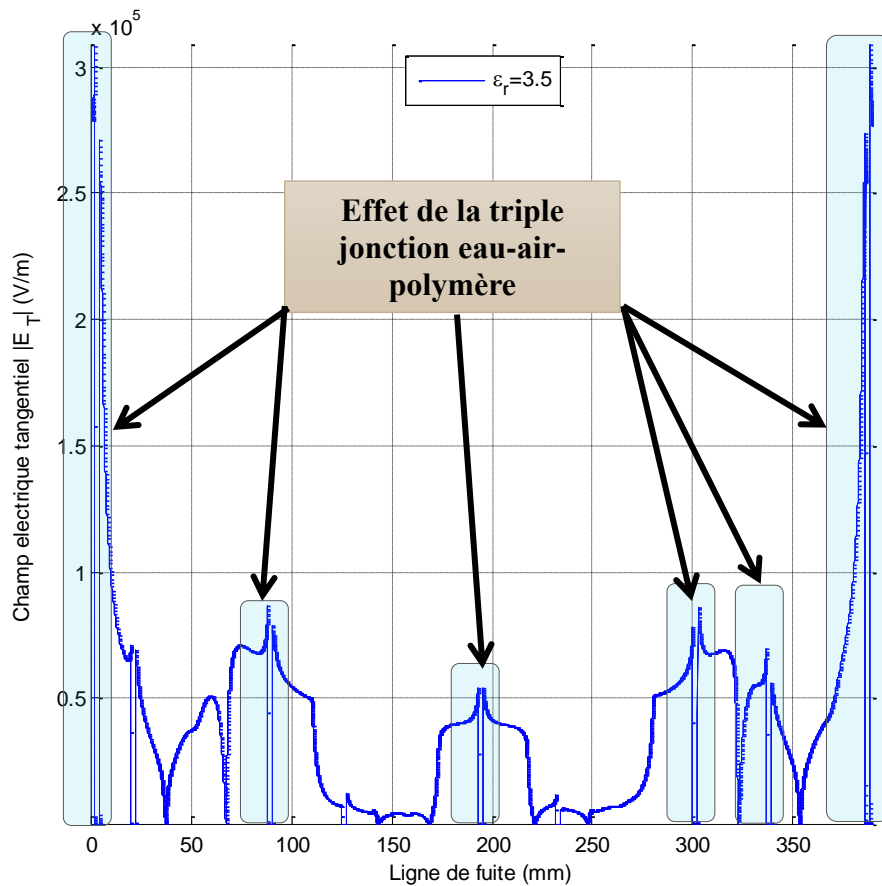


Figure 70: Distribution du champ tangentiel le long de la ligne de fuite dans le cas d'un isolateur recouvert de gouttelettes d'eau.

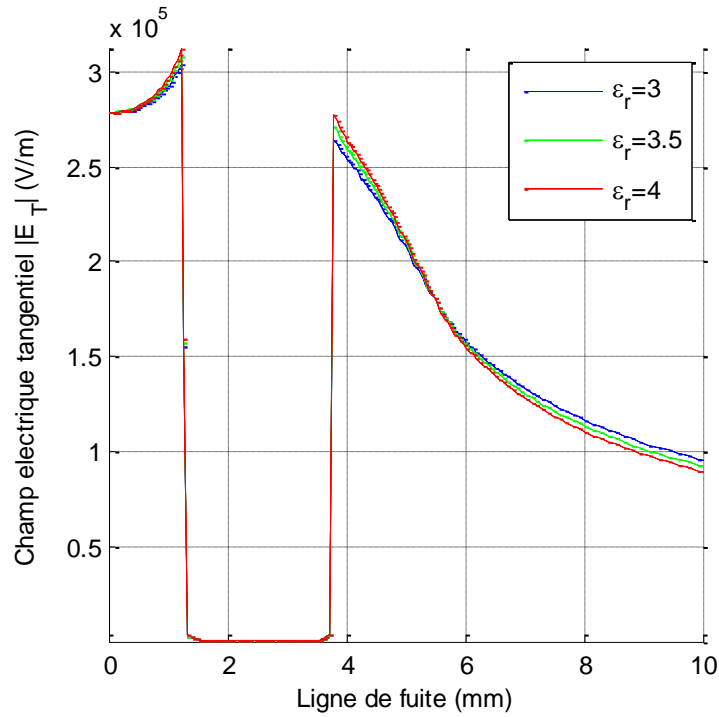


Figure 71: Distribution du champ tangentiel le long de la ligne de fuite dans le cas d'un isolateur recouvert de gouttelettes d'eau dans le voisinage des électrodes.

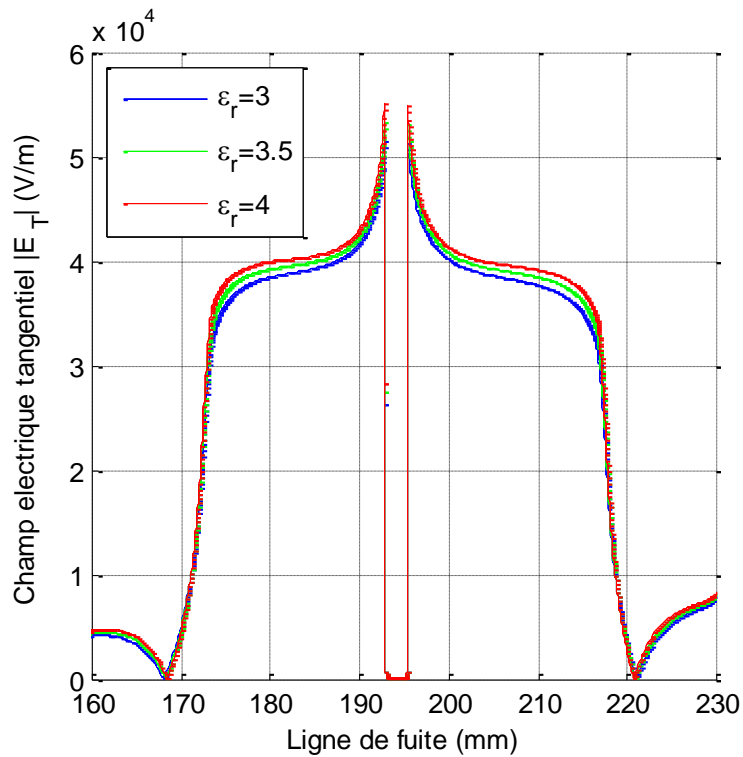


Figure 72: Distribution du champ tangentiel le long de la ligne de fuite dans le cas d'un isolateur recouvert de gouttelettes d'eau au niveau de la zone Z3.

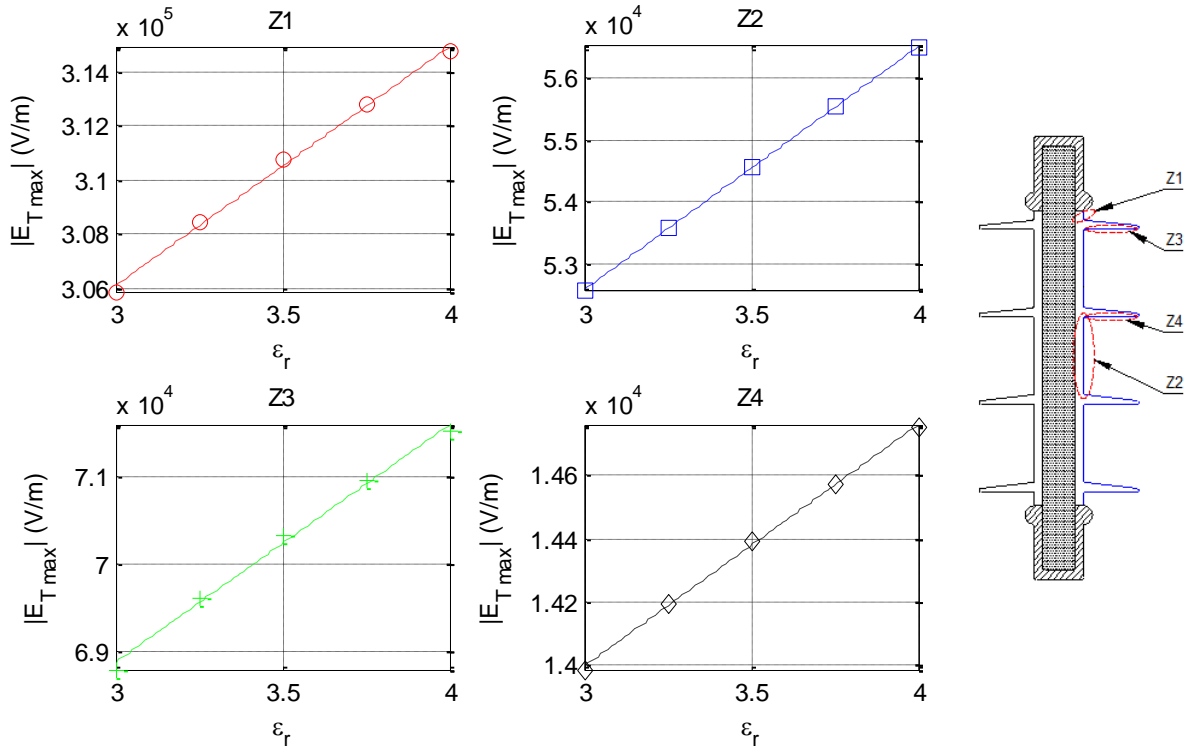


Figure 73: Variation du champ maximal dans les diverses zones de l'isolateur en fonction de la valeur de la permittivité de son revêtement.

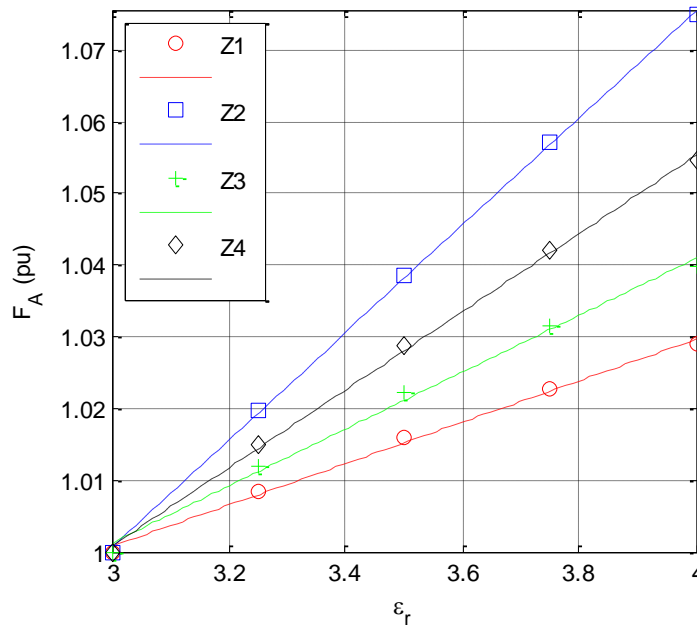


Figure 74: Variation du facteur d'altération ( $F_A$ ) dans les diverses zones de l'isolateur en fonction de la valeur de la permittivité de son revêtement.

### V.4.2. INFLUENCE DE LA VARIATION DE L'HYDROPHOBICITE DU REVETEMENT DE L'ISOLATEUR SUR LA DISTRIBUTION DU CHAMP ELECTRIQUE

Au cours de cette partie nous allons nous intéresser à l'effet de la variation de l'hydrophobicité sur le champ tangentiel le long de la surface du revêtement. Ainsi, le calcul du champ électrique sera effectué pour des gouttelettes recouvrant les diverses zones de l'isolateur. Les dites gouttelettes auront un volume constant avec un angle de contact variable.

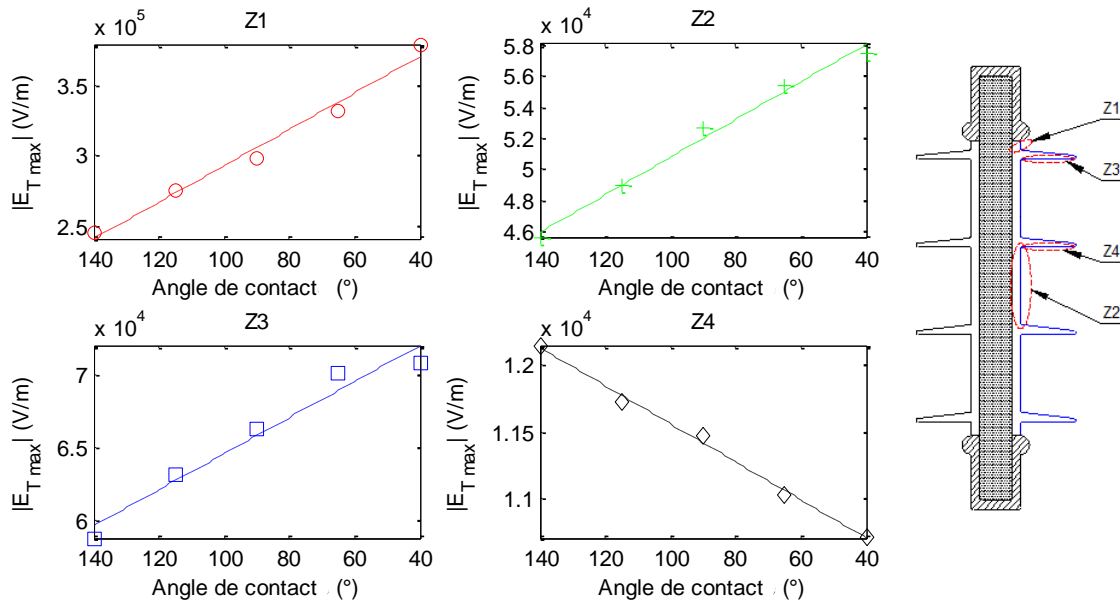


Figure 75: Variation du champ tangentiel maximal dans les diverses zones de l'isolateur en fonction de la valeur de l'angle de contact.

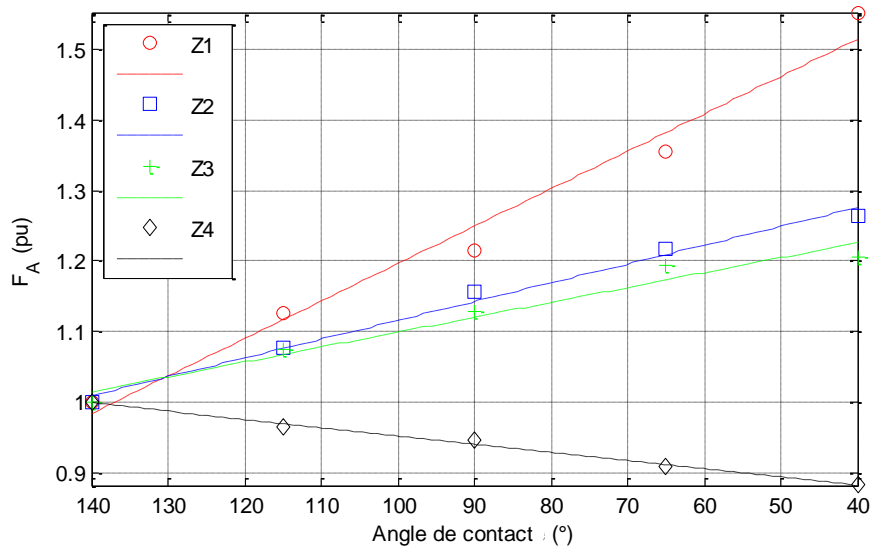


Figure 76: Variation du facteur d'altération ( $F_A$ ) dans les diverses zones de l'isolateur en fonction de la valeur de l'angle de contact.

Nous pouvons noter à travers la Figure 75 que la diminution de l'angle de contact correspondant au vieillissement de l'isolateur a pour effet d'augmenter  $E_{T \text{ Max}}$  pour la plupart des zones de la ligne de fuite de l'isolateur notamment celle connaissant la valeur la plus élevée du champ tangentiel (Zone Z1).

Il en découle, ainsi, que le facteur d'altération augmente également pour la plupart des zones lors du vieillissement de l'isolateur tel que nous pouvons le noter à travers la Figure 76.

## V.5. OPTIMISATION DE LA CONSTRUCTION DE L'ISOLATEUR POUR LA MINIMISATION DE L'EFFET DE SON VIEILLISSEMENT

A partir des résultats de simulation obtenus, il a été possible de constater que le vieillissement du revêtement de l'isolateur a pour effet de modifier la distribution du champ électrique le long de la ligne de fuite. Nous avons, ainsi, pu constater que la dégradation de l'isolant, en terme d'augmentation de sa permittivité relative et de diminution de ses propriétés hydrophobes, implique une augmentation du facteur d'altération ( $F_A$ ) pour la plupart des zones de l'isolateur y compris celles qui connaissent les champs les plus élevés. Cette augmentation a pour effet de causer une augmentation du courant de fuite d'où l'accélération d'apparition de défauts au sein de l'isolateur

En conséquence, il devient clair que la conception de l'isolateur doit prendre en compte l'effet du vieillissement du revêtement sur le comportement de l'isolateur. Tel qu'illustré dans la Figure 77, le facteur d'altération  $F_A$  qui mesure l'effet du vieillissement sur le champ électrique doit être, ainsi, minimisé afin de prolonger la durée de vie de l'équipement.

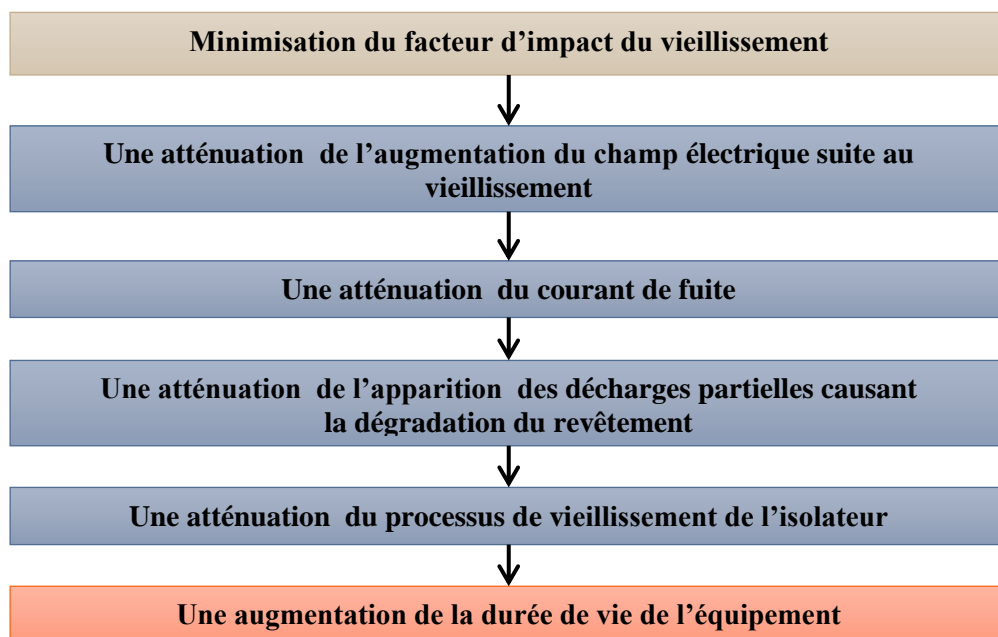


Figure 77: Effet de la minimisation du facteur d'impact sur les performances de l'isolateur

Dans le cadre de cette étude, nous allons proposer une procédure d'aide à la conception des isolateurs composites ayant pour rôle de minimiser l'effet du vieillissement du revêtement sur les performances de l'équipement. Cet outil consiste à trouver la configuration optimale de l'isolateur en termes de rayon des électrodes, de rayon des ailettes et d'épaisseur du revêtement pour laquelle l'augmentation du champ électrique suite au vieillissement de l'isolateur est minimale. Un comparatif entre l'état neuf et vieilli de l'isolateur sera, ainsi, effectué pour le calcul du facteur d'altération  $F_A$ .

Le Tableau 19 ci-dessous illustre les caractéristiques du revêtement avant et après vieillissement qui ont été considérées dans cette étude.

**Tableau 19: Caractéristiques du revêtement avant et après vieillissement**

	Revêtement neuf	Revêtement vieilli
Constante diélectrique	3	4
Angle de contact	140°	40°

Dans le cadre de la recherche de la configuration optimisée de l'isolateur, nous avons considéré que les paramètres d'optimisation que sont le rayon des électrodes, le rayon des ailettes et l'épaisseur du revêtement varient dans les intervalles indiqués dans le Tableau 20 ci-dessous.

**Tableau 20: Intervalles de variation des paramètres d'optimisation**

	Valeur Min	Valeur Max
Rayon des électrodes	1 mm	16 mm
Rayon des ailettes du revêtement	27.8 mm	62.2 mm
Epaisseur du revêtement	1 mm	5mm

La configuration considérée dans le cadre de cette optimisation est celle d'un isolateur recouvert de gouttelettes d'eau. Le facteur d'impact à minimiser est celui relatif à la zone 1 (Voisinage des électrodes) car cette dernière connaît les valeurs du champ électrique et de  $F_A$  les plus importantes.

Dans un premier temps, l'optimisation qui a été réalisée dans cette étude avait pour objectif de minimiser  $E_T$  sans prendre en compte la valeur du champ électrique au niveau de la configuration optimisée de l'isolateur. Les résultats de cette optimisation sont relatifs à la configuration N°1 illustrée dans le Tableau 21. Nous pouvons y noter que le champ tangentiel maximal avant que l'isolateur ne subisse de dégradation ( $|E_{T \text{ Max Avant vieillissement}}|$ ) est supérieur à celui de la configuration non optimisée de l'isolateur.

A cet effet, nous avons introduit une condition supplémentaire dans notre algorithme d'optimisation. Cette condition requière que  $|E_{T \text{ Max Avant vieillissement}}|$  de la configuration optimisée soit inférieur à celui de la configuration non optimisée. Les résultats du processus d'optimisation

qui intègre cette nouvelle condition sont relatifs à la configuration N°2 illustrée dans le Tableau 21.

Le diagramme indiqué dans la Figure 78 illustre le processus d'optimisation qui a été appliqué.

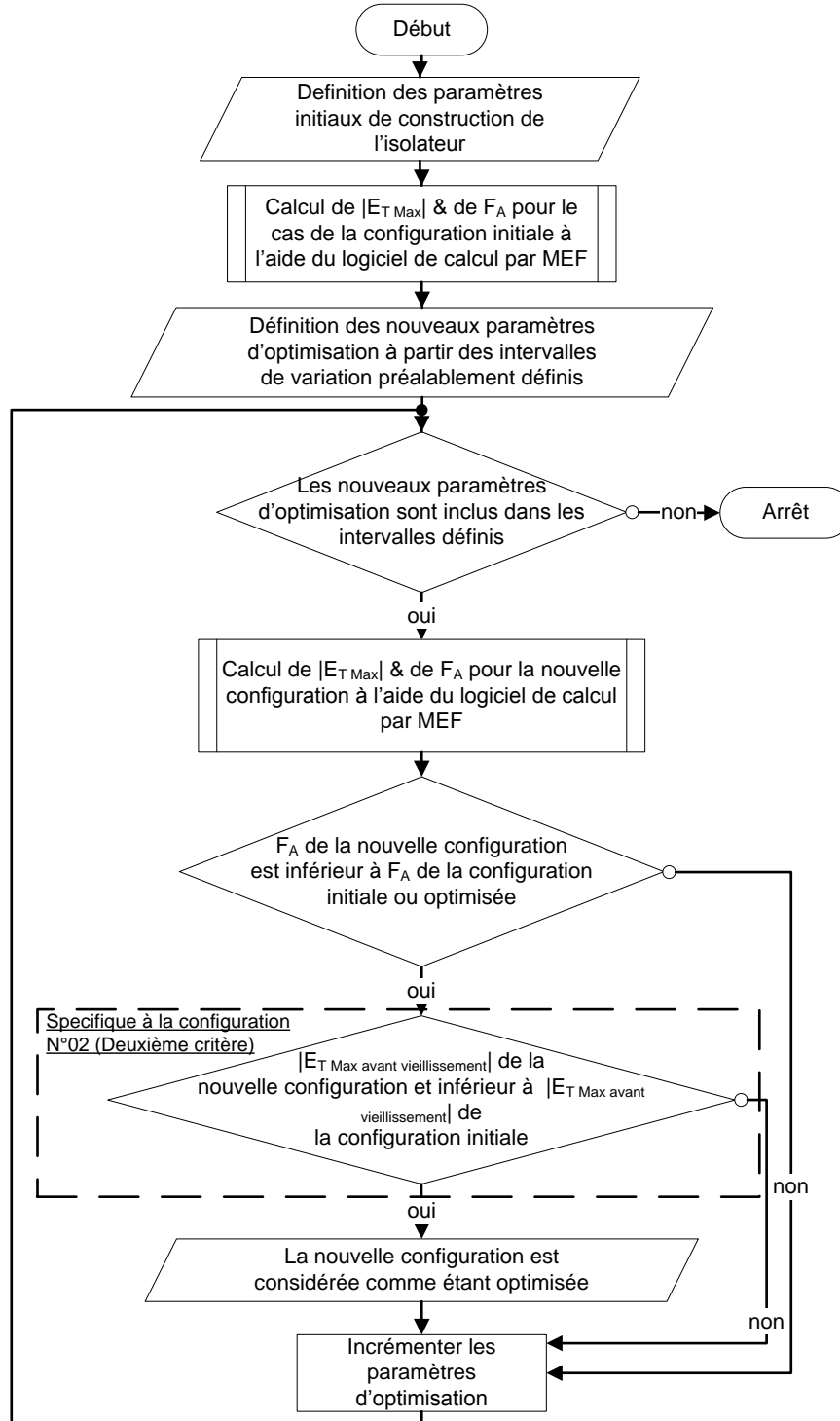


Figure 78: Diagramme schématisant le processus d'optimisation de la conception de l'isolateur

**Tableau 21: Paramètres d'optimisation utilisés pour la minimisation de  $F_A$**

Configuration de l'isolateur	$F_A$ (u)	$ E_{T_{Max}} $ Avant vieillissement (V/m)	$ E_{T_{Max}} $ Après vieillissement (V/m)	Epaisseur du revêtement (mm)	Rayon des électrodes (mm)	Rayon des ailettes (mm)
Configuration initiale	1.9017	$2.26 \times 10^5$	$4.30 \times 10^5$	5	5	45
Configuration N°01	1.8037	$2.31 \times 10^5$	$4.17 \times 10^5$	4	1	27.8
Configuration N°02	1.8480	$2.01 \times 10^5$	$3.73 \times 10^5$	5	11	62.2

Il apparaît à travers les deux configurations résultantes qu'une condition unique sur  $F_A$  n'est pas suffisante pour une optimisation efficace. En effet, malgré le fait que  $F_A$  soit le plus petit pour la configuration N°1, l'ajout d'un critère sur la valeur du champ électrique a pour effet de diminuer de manière significative  $|E_{T_{Max}}|$  avant est après le vieillissement.

En effet, nous pouvons noter que  $|E_{T_{Max}}|$  Avant vieillissement a diminué de 11% entre la configuration initiale et la configuration N°2 alors qu'il a augmenté de 2% pour la configuration N°1.  $|E_{T_{Max}}|$  Après vieillissement a, quant à lui, diminué de 13% entre la configuration initiale et la configuration N°2 alors qu'il a diminué de seulement 4% pour la configuration N°1.

## V.6. CONCLUSION

Dans le cadre de ce travail, nous avons mis au point une méthode de quantification des effets du vieillissement du revêtement polymère sur les performances de l'isolateur.

Il est apparu que le vieillissement du revêtement a pour effet d'engendrer une augmentation du champ électrique tangentiel le long de la ligne de fuite. Cette augmentation peut être atténuée grâce à l'optimisation de la conception de l'isolateur.

Il est à noter que la minimisation de  $F_A$  n'est pas suffisante, à elle seule, pour obtenir des performances satisfaisantes en termes de réduction de la valeur du champ électrique. Un second critère doit être ajouté afin d'obtenir les résultats escomptés.



**CONCLUSION GÉNÉRALE ET  
PERSPECTIVES**

---

Les travaux de thèse ont été fondés sur l'objectif de l'évaluation de l'effet du vieillissement du revêtement d'un isolateur composite sur les performances de ce dernier suite à une exposition similaire à celle qui peut être rencontrée dans un milieu aride tel que le désert algérien.

Pour cela, nous avons commencé par l'évaluation du comportement d'un EPDM industriel utilisé comme revêtement d'isolateur composite suite à son exposition aux contraintes environnementales. Afin de simuler ces contraintes, nous avons appliqué des essais accélérés de vieillissement thermique et sous rayonnement ultraviolet. Nous avons étudié l'évolution des caractéristiques physico-chimiques, électriques et mécaniques du matériau le long des essais de vieillissement. Grâce aux résultats obtenus, nous avons mis en évidence les mécanismes dominants de dégradation conformément à ce qu'il a été reporté lors de notre recherche bibliographique. L'analyse de la corrélation que nous avons effectuée a montré de fortes liaisons entre certains paramètres significatifs du vieillissement du matériau.

Notre étude consiste à mesurer les effets du vieillissement thermique et photochimique aux échelles moléculaire, microstructurale et macroscopique du revêtement en EPDM d'un isolateur composite à haute tension. Ceci, dans l'objectif d'en déduire les liaisons pouvant exister entre les indicateurs jugés représentatifs des phénomènes de dégradation qui n'offrent pas nécessairement aux mêmes échelles de la matière. A notre connaissance cette approche n'a jamais été abordée dans le cas du matériau faisant l'objet de notre étude.

Ayant cerné l'étendue de l'altération du revêtement de l'isolateur lors de son vieillissement, nous nous sommes intéressés à l'impact de cette dégradation sur les performances globales du système d'isolement. Sur la base de la méthode des éléments finis, nous avons évalué l'effet du vieillissement du revêtement de l'isolateur sur le champ électrique le long de sa ligne de fuite. Un algorithme d'optimisation utilisé comme outil d'aide à la conception des isolateurs composites a été proposé afin d'atténuer les effets du vieillissement du revêtement.

Les différents résultats obtenus dans le cadre de notre travail ont permis de tirer les conclusions suivantes:

- La réticulation et la thermo-oxydation sont les principaux mécanismes ayant lieu lors du vieillissement thermique de l'EPDM.
- La dégradation thermique de l'EPDM est accompagnée par la génération de groupes carbonyles (C=O) et la perte de ses composants volatiles tels que les huiles, les stabilisants et les plastifiants.
- Lors du vieillissement thermique, il est apparu que la scission des chaînes commence dès le début de l'essai de vieillissement. Cette dégradation a lieu à une température de 100°C. Son ampleur prend de l'importance avec l'augmentation de la température de vieillissement. En contrepartie, l'effet de la réticulation est moins marqué pour une température de vieillissement de 100°C. Il est, par contre, très visible pour des températures de vieillissement de 120°C et de 140°C.
- A travers la mesure des caractéristiques électriques et diélectriques lors du vieillissement thermique de l'EPDM, il est apparu qu'une forte liaison existe entre la permittivité

relative du matériau et sa résistivité volumique. Nous pouvons en déduire que les mêmes mécanismes interviennent dans l'évolution des dites propriétés.

- Le changement de la colorimétrie du matériau s'avère être un paramètre significatif du vieillissement thermique de l'EPDM du fait du fort couplage que présente cette caractéristique avec l'allongement à la rupture et la dureté. Grâce aux modèles de régression établis dans le cadre de cette étude, il devient possible d'évaluer les propriétés mécaniques du matériau en faisant appel à des mesures de la colorimétrie qui sont non destructives et facile à mettre en œuvre.
- Les principaux mécanismes observés au cours du vieillissement sous rayonnement ultraviolet sont la photo-oxydation qui entraîne une dépolymérisation du matériau. Dans une moindre mesure, l'EPDM connaît une réticulation. Nous avons pu noter, également, une érosion de la surface des échantillons.
- En ce qui concerne le vieillissement sous rayonnement ultraviolet, il n'a pas été possible de détecter de changement de  $T_g$  par la méthode DSC alors que la transition thermomécanique mesurée par analyse DMA a permis de mettre en évidence un changement de température de transition vitreuse. La méthode DMA s'avère, ainsi, plus appropriée pour l'analyse d'échantillons dégradés en surface comparativement à la technique DSC.
- Grâce à la technique TGA, il est apparu que le vieillissement sous rayonnement ultraviolet à température contrôlée n'engendre pas de perte des composants volatiles tels qu'il a été possible de constater lors du vieillissement thermique.
- Le vieillissement sous rayonnement ultraviolet de l'EPDM est accompagné par la génération de groupes carbonylés (C=O). Leur augmentation tend à être moins importante après 1000 heures de vieillissement. La mesure de la résistivité surfacique ( $\rho_s$ ) a montré qu'elle est fortement corrélée à l'indice carbonylé (IC). Il est apparu que  $\rho_s$  reste stable jusqu'à une valeur critique de IC égale à 0.75 à partir de laquelle nous avons constaté que la résistivité surfacique diminue.
- Lors du vieillissement sous rayonnement nous avons pu observer une liaison linéaire entre l'indice carbonylé mesuré avec la spectroscopie FTIE et le ratio O/C mesuré par la méthode EDS. Il apparaît, ainsi, qu'une mesure d'une seule de ces caractéristiques permet la détermination de l'autre propriété.
- Le calcul du champ électrique le long de la ligne de fuite d'un isolateur composite a montré que le vieillissement de son revêtement isolant a pour effet de générer une augmentation du champ électrique tangentiel. Ce dernier est responsable d'une augmentation du courant de fuite d'où une dégradation supplémentaire du revêtement de l'isolateur. Il est apparu que la modification de la géométrie de l'isolateur peut atténuer cette augmentation. Nous avons, ainsi, pu proposer un algorithme d'optimisation intervenant sur les dimensions des composants de l'isolateur et permettant de minimiser l'augmentation du champ électrique lorsque le revêtement de l'isolateur subit un vieillissement.

En perspective, des recherches supplémentaires peuvent être menées afin d'étudier la corrélation susceptible d'avoir lieu entre les paramètres significatifs du vieillissement lors d'une exposition à des conditions de vieillissement autres que celles qui ont été appliquées dans cette étude, telles que l'exposition à l'environnement marin ou à la pollution chimique.

En enrichissant les résultats obtenus avec des mesures supplémentaires permettant d'élargir la base de données des résultats de caractérisation, des méthodes d'apprentissage automatique peuvent être appliquées pour créer un modèle à base d'intelligence artificielle permettant de prédire le comportement du matériau au cours de son vieillissement. Il sera, ainsi, possible d'évaluer certaines caractéristiques, pouvant être mesurées que par des méthodes destructives, à l'aide de méthodes non destructives et faciles à mettre en œuvre. Les campagnes de caractérisation du vieillissement se trouveront, alors, grandement facilitées.

# **RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES**

---

- [1] D. Bouguedad, A. Mekhaldi, A. Boubakeur, and O. Jbara, "Thermal ageing effects on the properties of ethylene-propylene-diene monomer (EPDM)," *Sciences des matériaux*, vol. 33, pp. 303 – 313, 2008.
- [2] Y. A. Bencherif, A. Mekhaldi, J. Lobry, M. Olivier, and M. Poorteman, "Molecular Macroscopic Characterization of EPDM's Aging Used for Outdoor High Voltage Insulators," in *2018 International Conference on Electrical Sciences and Technologies in Maghreb (CISTEM)*, 2018, pp. 1-5.
- [3] A. Khattak and M. Amin, "Influence of stresses and fillers on the aging behaviour of polymeric insulators," *Rev. Adv. Mater. Sci*, vol. 44, pp. 194-205, 2016.
- [4] N. S. Tomer, F. Delor-Jestin, R. P. Singh, and J. Lacoste, "Cross-linking assessment after accelerated ageing of ethylene propylene diene monomer rubber," *Polymer Degradation and Stability*, vol. 92, pp. 457-463, 2007.
- [5] P. Sorichetti, C. Matteo, O. Lambri, G. Manguzzi, L. Salvatierra, and O. Herrero, "Structural changes in EPDM subjected to ageing in High Voltage Transmission Lines," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 14, 2007.
- [6] Q. Zhao, X. Li, and J. Gao, "Aging behavior and mechanism of ethylene–propylene–diene monomer (EPDM) rubber in fluorescent UV/condensation weathering environment," *Polymer Degradation and Stability*, vol. 94, pp. 339-343, 2009.
- [7] A. Rivaton, J. L. Gardette, B. Mailhot, and S. Morlat Therlas, "Basic aspects of polymer degradation," in *Macromolecular Symposia*, 2005, pp. 129-146.
- [8] Q. Zhao, X. Li, and J. Gao, "Aging of ethylene–propylene–diene monomer (EPDM) in artificial weathering environment," *Polymer Degradation and Stability*, vol. 92, pp. 1841-1846, 2007.
- [9] N. C. Mavrikakis, P. N. Mikropoulos, and K. Siderakis, "Evaluation of field-ageing effects on insulating materials of composite suspension insulators," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 24, pp. 490-498, 2017.
- [10] Q. Zhao, X. Li, and J. Gao, "Surface degradation of ethylene–propylene–diene monomer (EPDM) containing 5-ethylidene-2-norbornene (ENB) as diene in artificial weathering environment," *Polymer Degradation and Stability*, vol. 93, pp. 692-699, 2008.
- [11] M. Ehsani, H. Borsi, E. Gockenbach, J. Morshedian, and G. R. Bakhshandeh, "An investigation of dynamic mechanical, thermal, and electrical properties of housing materials for outdoor polymeric insulators," *European Polymer Journal*, vol. 40, pp. 2495-2503, 2004.
- [12] R. A. Ghunem, L.-L. Tay, H. Terrab, and A. H. El-Hag, "Analysis of service-aged 200 kV and 400 kV silicone rubber insulation in the Gulf region," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 23, pp. 3539-3546, 2016.
- [13] L. S. Nasrat, A. A. Ibrahim, and H. A. Mortadda, "Effect of Environmental Desert Conditions on the Performance of Hydrophobic Polymer Insulators Surfaces," *International Journal of Emerging Technology and Advanced Engineering*, vol. 4, pp. 567-574, 2014.
- [14] Y. Khan, *Hydrophobic characteristics of EPDM composite insulators in simulated arid desert environment* vol. 33, 2009.

- [15] S. Sokolija, M. Kapetanovic, and M. Hajro, "Some considerations concerning composite insulators design," in *International Conference on Electrical and Electronics Engineering*, 1999, pp. 72-75.
- [16] M. Amin and M. Salman, "Aging of polymeric insulators (an overview)," *Rev. Adv. Mater. Sci*, vol. 13, pp. 93-116, 2006.
- [17] J. Zhou, "Electrical Characteristics of Aged Composite Insulators," Queensland University of Technology, 2003.
- [18] J. F. Hall, "History and bibliography of polymeric insulators for outdoor applications," *IEEE Transactions on Power Delivery*, vol. 8, pp. 376-385, 1993.
- [19] L. Simoni, "A general phenomenological life model for insulating materials under combined stresses," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 6, pp. 250-258, 1999.
- [20] M. Ben Hassine, "Modélisation du vieillissement thermique et mécanique d'une protection externe en EPDM de jonctions rétractables à froid," 2013.
- [21] T. Tanaka, "Aging of polymeric and composite insulating materials. Aspects of interfacial performance in aging," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 9, pp. 704-716, 2002.
- [22] J. Verdu, "Vieillessement des plastiques', AFNOR Technique," Eyrolles, 1984.
- [23] P. Paloniemi, "Theory of Equalization of Thermal Ageing Processes of Electrical Insulating Materials in Thermal Endurance Tests I: Review of Theoretical Basis of Test Methods and Chemical and Physical Aspects of Ageing," *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, vol. EI-16, pp. 1-6, 1981.
- [24] D. Bouguedad, O. Jbara, S. Rondot, A. Mekhaldi, and A. Hadjadj, "Investigation of accelerated thermal aging of EPDM polymer by electric tests in air and by means of a SEM technique in high vacuum," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 19, pp. 981-989, 2012.
- [25] S. Pelissou, H. St-Onge, and M. R. Wertheimer, "Dielectric Breakdown in Polyethylene at Elevated Temperatures," *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, vol. EI-19, pp. 241-244, 1984.
- [26] D. Bouguedad, "Influence du vieillissement thermique sur les propriétés de l'éthylène propylène diène monomère (EPDM)," Université Mouloud Mammeri, 2010.
- [27] C. Menguy, *Mesure des caractéristiques des matériaux isolants solides*: Ed. Techniques Ingénieur, 1997.
- [28] J.-P. Trotignon, *Précis de matières plastiques: structures-propriétés, mise en oeuvre et normalisation*, 1993.
- [29] J. Crine and H. St-Onge, "Evaluation of aging in transmission and distribution extruded dielectric cables," in *Proc. Jicable 87*, 1987, pp. 426-435.
- [30] P. Combette and I. Ernoult, *Physique des polymères* vol. 1: Presses inter Polytechnique, 2005.
- [31] B. Fallou, "Caractéristiques des isolants solides. Méthode de mesure, valeurs et signification," *Techniques de l'ingénieur A*, vol. 3151, p. 1980, 1970.

- [32] A. Tzimas, E. D. Silva, S. M. Rowland, B. Boumeced, M. Queen, and M. Michel, "Asset management frameworks for outdoor composite insulators," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 19, pp. 2044-2054, 2012.
- [33] S. Gubanski, A. Derfalk, S. Wallström, and S. Karlsson, "Biological contamination of insulators: influence on performance and diagnostic techniques to assess the problem," in *INMR World Insulator Congress*, 2005.
- [34] S. Wallstrom, K. Dowling, and S. Karlsson, "Microbiological growth testing on silicone rubber materials for outdoor high voltage insulation," in *ABSTRACTS OF PAPERS OF THE AMERICAN CHEMICAL SOCIETY*, 2001, pp. U356-U356.
- [35] S.-I. Han, J.-Y. Yoon, K.-S. Park, and S.-O. Han, "Surface degradation of silicone rubber under accelerated aging condition," in *IEEE 1997 Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena*, 1997, pp. 439-443.
- [36] X. Wang, S. Kumagai, M. Sato, and N. Yoshimura, "Contaminant properties of silicone rubber insulator in the accelerating aging of acid rain," in *1998 annual report conference on electrical insulation and dielectric phenomena (Cat. No. 98CH36257)*, 1998, pp. 48-51.
- [37] M. Ugur, A. Kuntman, and A. Merev, "The Effect of Environmental Factor on the Performance of Polyester Outdoor Insulators: Vol. 3," *Journal of Electrical & Electronics Engineering*, pp. 943-953, 2003.
- [38] J. Ndoumbe, "Etude comportementale des gouttelettes d'eau déposées sur la surface d'un isolateur composite haute tension en présence du champ électrique," Ecole Centrale de Lyon, 2014.
- [39] U. Kaltenborn, J. Kindersberger, and J. Speck, "Surface behaviour of epoxy castings during the early ageing period," in *ICSD'98. Proceedings of the 1998 IEEE 6th International Conference on Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics (Cat. No.98CH36132)*, 1998, pp. 269-272.
- [40] B. Varlow and D. Auckland, "The influence of mechanical factors on electrical treeing," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 5, pp. 761-766, 1998.
- [41] E. David, J.-L. Parpal, and J.-P. Crine, "Influence of internal mechanical stress and strain on electrical performance of polyethylene electrical treeing resistance," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 3, pp. 248-257, 1996.
- [42] R. Hartings, "The AC-behavior of a hydrophilic and hydrophobic post insulator during rain," *IEEE Transactions on Power Delivery*, vol. 9, pp. 1584-1592, 1994.
- [43] M. Michel, "Moving toward a complete on-line condition monitoring solution," in *Proc. 17th CIREN*, 2003, pp. 12-15.
- [44] S. M. Gubanski, A. Derfalk, J. Andersson, and H. Hillborg, "Diagnostic Methods for Outdoor Polymeric Insulators," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 14, pp. 1065-1080, 2007.
- [45] C. de Turreil, "REVIEW OF IN SERVICE DIAGNOSTIC TESTING OF COMPOSITE INSULATORS," *Electra*, vol. 169, pp. 105-119, 1996.
- [46] W. Vosloo and J. P. Holtzhausen, *The design principles of on-line insulator test stations to be used on power distribution and transmission networks*, 1996.



- [47] B. Pokarier, C. Lee, and D. Hawker, "Leakage current monitoring of composite long rod insulators," in *Proceedings of 1994 4th International Conference on Properties and Applications of Dielectric Materials (ICPADM)*, 1994, pp. 530-533 vol.2.
- [48] W. Shaowu, L. Xidong, C. Zixia, W. Xun, L. Zhi, Z. Yuanxiang, Y. Yu, W. Liming, and G. Zhicheng, "Hydrophobicity changing of silicone rubber insulators in service," in *CIGRÉ session*, 2002.
- [49] R. Sundararajan, A. Mohammed, N. Chaipanit, T. Karcher, and Z. Liu, "In-service aging and degradation of 345 kV EPDM transmission line insulators in a coastal environment," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 11, pp. 348-361, 2004.
- [50] F. H. Molina, A. P. Dadam, A. G. Kanashiro, W. Pinheiro, and G. R. d. Almeida, "Experimental study concerning the utilization of polymeric materials in distribution lines," in *2014 IEEE PES T&D Conference and Exposition*, 2014, pp. 1-5.
- [51] S. Kobayashi, Y. Matsuzaki, Y. Arashitani, and R. Kimata, "Development of composite insulators for overhead lines (Part 2)," *FURUKAWA ELECTRIC REVIEW*, pp. 55-60, 2001.
- [52] IEC, "61009 - Insulators for Overhead Lines Composite Suspension and Tension Insulators for AC Overhead Lines with a Nominal Voltage Greater Than 1 000 V Definitions," in *Test Methods and Acceptance Criteria*, ed, 2008.
- [53] A. Norma, "C29. 11," *American National Standard for Composite Suspension Insulators for Overhead Transmission Lines—Tests*, pp. 8-12, 1996.
- [54] "IEEE Standard for High-Voltage Testing Techniques - Redline," *IEEE Std 4-2013 (Revision of IEEE Std 4-1995) - Redline*, pp. 1-500, 2013.
- [55] "IEEE Application Guide for Evaluating Nonceramic Materials for High-Voltage Outdoor Applications," *IEEE Std 1133-1988*, pp. 1-20, 1988.
- [56] E. ISO, "4892-3: 2016," *Plastics. Methods of exposure to laboratory light sources. Part*, vol. 3.
- [57] A. International, "ASTM G154-16-Standard Practice for Operating Fluorescent Ultraviolet (UV) Lamp Apparatus for Exposure of Nonmetallic Materials," ed: ASTM International West Conshohocken, PA, 2016.
- [58] F. Perrot, "Multifactor pollution testing to assess the long term performance of composite surge arresters and insulators," in *IEE conference publication*, 1999, p. 4.
- [59] J. Fourmigue, M. Noel, and G. Riquel, "Aging of polymeric housing for HV insulators: comparison between natural and artificial testing," in *Proceedings of 1995 Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena*, 1995, pp. 404-407.
- [60] G. Haddad, "Prediction of remaining service life of polymer insulators," 2016.
- [61] "Manual of Atlas material testing solutions," Atlas Electric Devices Company 2001.
- [62] M. Ehsani, G. R. Bakhshandeh, J. Morshedean, H. Borsi, E. Gockenbach, and A. A. Shayegani, "The dielectric behavior of outdoor high-voltage polymeric insulation due to environmental aging," *European Transactions on Electrical Power*, vol. 17, pp. 47-59, 2007/01/01 2006.
- [63] Y. Bok-Hee and H. Chan-Su, "Surface degradation of HTV silicone rubber and EPDM used for outdoor insulators under accelerated ultraviolet weathering condition," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 12, pp. 1015-1024, 2005.

- [64] L. S. Nasrat and R. M. Sharkawy, "An investigation into the electrical properties of rubber blends for insulators," in *2007 Electrical Insulation Conference and Electrical Manufacturing Expo*, 2007, pp. 146-149.
- [65] IEC, "60216 - Electrical insulating materials - Thermal endurance properties - Part 1: Ageing procedures and evaluation of test results," ed, 2013.
- [66] P. Paloniemi and P. Lindstrom, "Theory of Equalization of Thermal Ageing Processes of Electrical Insulating Materials in Thermal Endurance Tests III. Tests Results on an Enamelled Wire, a Polyester Glass Laminate and an Epoxy Casting Resin," *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, pp. 18-30, 1981.
- [67] N. Bouaziz, "Effet du vieillissement thermique sur la tenue diélectrique du polyester-imide utilisé dans les machines électriques," Université Mouloud Mammeri, 2012.
- [68] S. D. Burnside and E. P. Giannelis, "Nanostructure and properties of polysiloxane-layered silicate nanocomposites," *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics*, vol. 38, pp. 1595-1604, 2000.
- [69] E. Sherif and C. Andreasson, "Results from long term tests with long rod composite insulators exposed to natural pollution," *Publisher:-NordIS*, vol. 84, 1984.
- [70] T. Sorquist and A. E. Vlastos, "Outdoor polymeric insulators long-term exposed to HVDC," in *Proceedings of 1996 Transmission and Distribution Conference and Exposition*, 1998, pp. 135-142.
- [71] T. Sörqvist, *Polymeric outdoor insulators-A long-term study*: Chalmers University of Technology, 1997.
- [72] C. Restrepo, T. Osswald, and J. Hernández-Ortiz, *METHODOLOGY FOR GENERATION OF TIME-TEMPERATURE- TRANSFORMATION (TTT) DIAGRAM: SOLID AND CELLULAR EPDM*, 2013.
- [73] M. Qu, F. Deng, S. M. Kalkhoran, A. Gouldstone, A. Robisson, and K. J. Van Vliet, "Nanoscale visualization and multiscale mechanical implications of bound rubber interphases in rubber-carbon black nanocomposites," *Soft Matter*, vol. 7, pp. 1066-1077, 2011.
- [74] S. Magonov, V. Elings, and M.-H. Whangbo, "Phase imaging and stiffness in tapping-mode atomic force microscopy," *Surface science*, vol. 375, pp. L385-L391, 1997.
- [75] E. Mboundou, "Etude des phénomènes liés à la dégradation des matériaux polymères sous champ électrique en présence d'humidité," Besançon, 2006.
- [76] V. Le Saux, "Fatigue et vieillissement des élastomères en environnements marin et thermique: de la caractérisation accélérée au calcul de structure," Université de Bretagne occidentale-Brest, 2010.
- [77] J. Gulmine and L. Akcelrud, "FTIR characterization of aged XLPE," *Polymer Testing*, vol. 25, pp. 932-942, 2006.
- [78] A. Sidi, "Etude de la dégradation radiolytique de polymères constitutifs de câbles contrôle/commande K1 en ambiance nucléaire," Université Blaise Pascal-Clermont-Ferrand II, 2016.
- [79] L. Barbeş, C. Rădulescu, and C. Stihi, "ATR-FTIR spectrometry characterisation of polymeric materials," *Romanian Reports in Physics*, vol. 66, pp. 765-777, 2014.

- [80] D. Bouguedad, A. Mekhaldi, O. Jbara, S. Rondot, A. Hadjadj, J. Douglade, and P. Dony, "Physico-chemical study of thermally aged EPDM used in power cables insulation," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 22, pp. 3207-3215, 2015.
- [81] N. Ning, Q. Ma, Y. Zhang, L. Zhang, H. Wu, and M. Tian, "Enhanced thermo-oxidative aging resistance of EPDM at high temperature by using synergistic antioxidants," *Polymer Degradation and Stability*, vol. 102, pp. 1-8, 2014.
- [82] F. Noronha, J. M. G. Angelini, N. C. Góis, and L. H. I. Mei, "Performance development requirements for elastomers of electric power network insulators," *Journal of Materials Processing Technology*, vol. 162–163, pp. 102-108, 2005.
- [83] A. Khattak and M. Amin, "Accelerated aging investigation of high voltage EPDM/silica composite insulators," *Journal of Polymer Engineering*, vol. 36, pp. 199-209, 2016.
- [84] B. Venkatesulu and M. J. Thomas, "Erosion resistance of alumina-filled silicone rubber nanocomposites," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 17, pp. 615-624, 2010.
- [85] J. GRENET and B. LEGENDRE, "Analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC)," 2010.
- [86] T. Mohamed Benabdallh, *Synthesis and structural characterization of metallic iodate, materials laser frequency converters*, 2008.
- [87] A. Shabani, "Thermal and radiochemical of neat and ATH filled EPDM: establishment of structure/properties relationships," Paris, ENSAM, 2013.
- [88] E. Prandato, "Relations structure-propriétés et résistance à l'endommagement de vernis acrylate photo-polymérisables pour substrats thermoplastiques: évaluation de monomères bio-sourcés et de nano-charges," INSA de Lyon, 2013.
- [89] B. X. Du and Y. Liu, "Pattern analysis of discharge characteristics for hydrophobicity evaluation of polymer insulator," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 18, pp. 114-121, 2011.
- [90] L. Zhao, C. Li, J. Xiong, S. Zhang, J. Yao, and X. Chen, "Online Hydrophobicity Measurement for Silicone Rubber Insulators on Transmission Lines," *IEEE Transactions on Power Delivery*, vol. 24, pp. 806-813, 2009.
- [91] S. Isaka, Y. Ishioka, and K. Abe, "Diagnosis by colorimetry of aged insulating paper of transformers," in *Proceedings of 1995 International Symposium on Electrical Insulating Materials*, 1995, pp. 279-282.
- [92] F. Salpin, "Laine et colorants: fixation, quantification et vieillissement: étude par spectrométrie Raman," Paris 6, 2008.
- [93] W. A. Maryniak, T. Uehara, and M. A. Noras, "Surface resistivity and surface resistance measurements using a concentric ring probe technique," *Trek Application Note*, vol. 1005, pp. 1-4, 2003.
- [94] V. Rousson, *Statistique appliquée aux sciences de la vie*: Springer, 2013.
- [95] R. Rakotomalala, "Analyse de corrélation. Étude des dépendances–Variables quantitatives (Version 1.1.)," ed: Tiré de <http://www.eric.univ-lyon2.fr/~ricco/cours/Analyse de ...>, 2015.

- [96] R. Nelsen, "Kendall tau metric, Hazewinkel, Michiel, Encyclopedia of Mathematics," ed: Springer, 2001.
- [97] C. Grasland, "INITIATION AUX METHODES STATISTIQUES EN SCIENCES SOCIALES," ed, 2000.
- [98] F. d. M. Paris-Ile-de-France-Ouest. (2005). *Seuil de signification - Rejet de l'hypothèse nulle*. Available: [http://www.pifo.uvsq.fr/epideao/esp/chap\\_2/seuil\\_de\\_signification\\_rejet\\_de\\_lhypothse\\_nulle.html](http://www.pifo.uvsq.fr/epideao/esp/chap_2/seuil_de_signification_rejet_de_lhypothse_nulle.html)
- [99] P. Wessa, "Kendall tau Rank Correlation (v1.0.13) in Free Statistics Software (v1.2.1). Office for Research Development and Education," ed, 2017.
- [100] H. Nabil, H. Ismail, and A. R. Azura, "Optimisation of accelerators and vulcanising systems on thermal stability of natural rubber/recycled ethylene–propylene–diene–monomer blends," *Materials & Design*, vol. 53, pp. 651-661, 2014.
- [101] M. Ginic-Markovic, N. Roy Choudhury, M. Dimopoulos, D. R. G. Williams, and J. Matison, "Characterization of elastomer compounds by thermal analysis," *Thermochimica Acta*, vol. 316, pp. 87-95, 1998.
- [102] J. J. Penn and R. M. Paroli, "Evaluating the effects of aging on the thermal properties of EPDM roofing materials," *Thermochimica Acta*, vol. 226, pp. 77-84, 1993.
- [103] R. M. Paroli, O. Dutt, A. H. Delgado, and M. N. Mech, "Characterization of ethylene-propylene–diene monomer (EPDM) roofing membranes using thermogravimetry and dynamic mechanical analysis," *Thermochimica Acta*, vol. 182, pp. 303-317, 1991/06/20 1991.
- [104] V. Pistor, F. G. Ornaghi, R. Fiorio, and A. J. Zattera, "Thermal characterization of oil extracted from ethylene–propylene–diene terpolymer residues (EPDM-r)," *Thermochimica Acta*, vol. 510, pp. 93-96, 2010.
- [105] F. Le Lay, "Study on the lifetime of EPDM seals in nuclear-powered vessels," *Radiation Physics and Chemistry*, vol. 84, pp. 210-217, 2013.
- [106] V. Sáenz De Juano-Arbona, A. Vallés-Lluch, L. Contat-Rodrigo, and A. Ribes-Greus, "Chemical and thermal characterization of high- and low-density irradiated polyethylenes," *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 86, pp. 1953-1958, 2002.
- [107] P. Luo, Y. Xu, X. Gu, Y. Liao, J. Cui, Z. Lu, and Z. Ren, "Thermal and mechanical properties analysis for EHV XLPE cables with different operating years," in *Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP), 2013 IEEE Conference on*, 2013, pp. 47-51.
- [108] L. Boukezzi, A. Boubakeur, C. Laurent, and M. Lallouani, "Observations on structural changes under thermal ageing of cross-linked polyethylene used as power cables insulation," *Iranian Polymer Journal*, vol. 17, pp. 611-624, 2008.
- [109] A. M. Nobrega, M. L. B. Martinez, and A. A. A. de Queiroz, "Investigation and analysis of electrical aging of XLPE insulation for medium voltage covered conductors manufactured in Brazil," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 20, pp. 628-640, 2013.

- [110] L. Boukezzi, A. Boubakeur, C. Laurent, and M. Lallouani, "Observations on structural changes under thermal ageing of cross-linked polyethylene used as power cables insulation," 2008.
- [111] R. Saldivar-Guerrero, R. Hernández-Corona, F. A. Lopez-Gonzalez, L. Rejón-García, and V. Romero-Baizabal, "Application of unusual techniques for characterizing ageing on polymeric electrical insulation," *Electric Power Systems Research*, vol. 117, pp. 202-209, 2014.
- [112] J. V. Koleske, *Paint and Coating Testing Manual*, 14th Edition of the Gardner-Sward Handbook ed., 1995.
- [113] A. Kömmling, M. Jaunich, and D. Wolff, "Revealing effects of chain scission during ageing of EPDM rubber using relaxation and recovery experiment," *Polymer Testing*, vol. 56, pp. 261-268, 2016.
- [114] R. J. Seyler, *Assignment of the Glass Transition*: ASTM, 1994.
- [115] M. S. Rahman, I. M. Al-Marhubi, and A. Al-Mahrouqi, "Measurement of glass transition temperature by mechanical (DMTA), thermal (DSC and MDSC), water diffusion and density methods: A comparison study," *Chemical Physics Letters*, vol. 440, pp. 372-377, 2007/06/08/ 2007.
- [116] A. CHOUAIRI, A. BENALI, M. EL GHORBA, N. BARBE, and A. BENOUNA, "Étude de la résistance à la fatigue et analyse de l'endommagement des conductrices aériennes basses tensions issues des réseaux de distribution électriques," *21ème Congrès Français de Mécanique, 26 au 30 août 2013, Bordeaux, France (FR)*, 2013.
- [117] A. F. Younan, A. M. Choneim, A. A. A. Tawfik, and K. N. Abd-El-Nour, "Electrical and physical properties of ethylene—propylene—diene monomer (EPDM) rubber loaded with semi-reinforcing furnace black," *Polymer Degradation and Stability*, vol. 49, pp. 215-222, 1995/01/01 1995.
- [118] A. Rivaton, J.-L. Gardette, B. Mailhot, and S. Morlat-Therlas, "Basic Aspects of Polymer Degradation," *Macromolecular Symposia*, vol. 225, pp. 129-146, 2005.
- [119] T. Šarac, N. Quiévy, A. Gusarov, and M. J. Konstantinović, "The study of temperature and radiation induced degradation of cable polymers: A comparison between the mechanical properties of industrial and neat EPDM," *Procedia Structural Integrity*, vol. 2, pp. 2405-2414, 2016/01/01 2016.
- [120] T. Šarac, N. Quiévy, A. Gusarov, and M. J. Konstantinović, "Influence of  $\gamma$ -irradiation and temperature on the mechanical properties of EPDM cable insulation," *Radiation Physics and Chemistry*, vol. 125, pp. 151-155, 2016.
- [121] T. Šarac, J. Devaux, N. Quiévy, A. Gusarov, and M. J. Konstantinović, "The correlation between elongation at break and thermal decomposition of aged EPDM cable polymer," *Radiation Physics and Chemistry*, vol. 132, pp. 8-12, 2017.
- [122] L. Boukezzi, "Influence du vieillissement thermique sur les propriétés du polyéthylène réticulé chimiquement utilisé dans l'isolation des câbles de haute tension," Ecole Nationale Polytechnique, 2007.
- [123] T. Salivon, "Vieillissement thermique d'isolants en PVC et PELX de câbles électriques en environnement automobile," 2017.

- [124] D. Bouguedad, "Influence du vieillissement thermique sur les propriétés de l'éthylène propylène diène monomère (EPDM)," Thèse de Doctorat, Université de Tizi-Ouzou, 2010.
- [125] M. Nedjar, A. Boubakeur, A. Beroual, and M. Bournane, "Thermal aging of polyvinyl chloride used in electrical insulation," *Annales de Chimie Science des Matériaux*, vol. 28, pp. 97-104, 2003/09/01 2003.
- [126] M. Nedjar, "Effect of thermal aging on the electrical properties of crosslinked polyethylene," *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 111, pp. 1985-1990, 2009.
- [127] N. Yoshimura, S. Kumagai, and S. Nishimura, "Electrical and environmental aging of silicone rubber used in outdoor insulation," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 6, pp. 632-650, 1999.
- [128] T. Imakoma, Y. Suzuki, O. Fujii, and I. Nakajima, "Degradation of silicone rubber housing by ultraviolet radiation," in *Proceedings of 1994 4th International Conference on Properties and Applications of Dielectric Materials (ICPADM)*, 1994, pp. 306-308 vol.1.
- [129] R. A. Ghunem, L. L. Tay, H. Terrab, and A. H. El-Hag, "Analysis of service-aged 200 kV and 400 kV silicone rubber insulation in the Gulf region," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 23, pp. 3539-3546, 2016.
- [130] M. K. Moghadam, M. Taheri, S. Gharazi, M. Keramati, M. Bahrami, and N. Riahi, "A study of composite insulator aging using the tracking wheel test," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 23, pp. 1805-1811, 2016.
- [131] R. Abd Rahman, "Investigations of ZnO microvaristor for stress control on polymeric outdoor insulators," Cardiff University, 2012.
- [132] H. J. Wei, S. Jayaram, and E. Cherney, "A study of electrical stress grading of composite bushings by means of a resistive silicone rubber coating," *Journal of electrostatics*, vol. 63, pp. 273-283, 2005.
- [133] N. Murugan, G. Sharmila, and G. Kannayeram, "Design optimization of high voltage composite insulator using Electric field computations," in *2013 International conference on circuits, power and computing technologies (ICCPCT)*, 2013, pp. 315-320.
- [134] N. Mahdhi, B. Askri, K. Raouadi, G. Damamme, and R. Dakhli, "Study of dielectric properties of composite insulators for use in medium voltage overhead lines," *Journal of electrostatics*, vol. 71, pp. 892-897, 2013.
- [135] P.-b. Zhou, *Numerical analysis of electromagnetic fields*: Springer Science & Business Media, 2012.
- [136] K.-J. Bathe, *Finite element procedures*: Klaus-Jurgen Bathe, 2006.
- [137] H. Wang, Z. Peng, S. Zhang, and P. Liu, "Simulation study on E-field distribution and corona characteristics of composite insulator with water droplets," in *2013 Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena*, 2013, pp. 422-425.
- [138] C. Volat, "Comparison between the use of surface and volume conductivity to compute potential distribution along an insulator in presence of a thin conductive layer," in *2013 IEEE Electrical Insulation Conference (EIC)*, 2013, pp. 409-413.
- [139] IEC, "IEC TS 60815-1: Selection and dimensioning of high-voltage insulators intended for use in polluted conditions - Part 1: Definitions, information and general principles," ed, 2008.

- [140] M. Bouhaouche, A. Mekhaldi, and M. Tegar, "Improvement of electric field distribution by integrating composite insulators in a 400 kV AC double circuit line in Algeria," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 24, pp. 3549-3558, 2017.
- [141] E. D. Silva and S. M. Rowland, "The dependency of water droplet behaviour and leakage current pattern on electrode configuration," in *2009 IEEE Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena*, 2009, pp. 242-245.