REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE UNIVESITE MOULOUD MAMMERI DE TIZI-OUZOU





FACULTE DE GENIE ELECTRIQUE ET DE L'INFORMATIQUE

DEPARTEMENT D'ELECTROTECHNIQUE

MEMOIRE

de fin d'études

En vue de l'obtention du diplôme d'Ingénieur d'Etat en Electrotechnique

Option : Réseaux électriques



Etude de la rigidité diélectrique du polyméthacrylate de méthyle soumis à un vieillissement thermique.

Proposé et dirigé par :

 $M^{r}M$. Nedjar

<u>Etudié par :</u>

M^r Belkacem Marzouk

M^r Ait Braham Mahdi

Promotion : 2008/2009

Remerciements

Au terme de ce travaille nous tenons à exprimer nos remerciements les plus s'incères à notre promoteur Monsieur M. NEDJAR qui a été à l'origine de ce travail, pour ses conseils et ses encouragements qui nous ont beaucoup éclairci à mener à bien la réalisation de ce travail. Qu'il trouve ici notre profonde reconnaissance.

Nos remerciements et notre vive gratitude vont également à notre co-promoteur Monsieur M. S. HERZINE enseignant à l'Université Abderrahmane Mira, Bejaia pour sa constante disponibilité et le soutien qu'il nous a apporté pour mener à bien ce travail.

Nous remercions également Monsieur le président et Messieurs les membres de jury pour l'honneur qu'ils nous ont fait en acceptant de juger notre modeste travail.

Nous remercions aussi toute personne qui, de prés ou de loin, nous a aidé à réaliser ce travail.

Dédicaces

G







Sommaire

Introduction	ו générale	.01
--------------	------------	-----

Chapitre I: Présentation du polyméthacrylate de méthyle.

1. Généralités	03
1.1. Définition de la matière plastique)3)3
b. Polymérisation	03
C. Copolymérisation	03
1.2. Procédé de fabrication de la matière	04
a. Moulage par injection	04
b. Extrusion)4
1.3. Définition de la macromolécule	04
1.4. Caractéristiques physiques de la macromolécule	04
a)- Grande longueur	04
b)- Anisotropie	04
c)- Souplesse	25
1.5. Introduction aux polymères	25
1.6. Définition des polymères	25
1.7. Nomenclature des polymères	36
1.7.1. Homopolymères	36
1.7.2. Copolymères	36
1.7.4. Remarque concernant la nomenclature	36
1.8. Historique des polymères)7
1.9. Structure des polymères)7
1.10. Classification des polymères	30
1.10.1. Classification selon leur comportement thermomécanique	29
1. Les thermoplastes	29
2. Les thermodurcissables	29
3. Caoutchoucs et élastomères	29
1.10.2. Classification selon leur origine	10
Les polymères naturels	10
Les polymères artificiels	10
Les polymères synthétiques1	10
1.10.3. Classification selon leur domaine d'application	10
	10
a) Les polymères de grande diffusion1	10 10
a) Les polymères de grande diffusion1 b) Les polymères techniques1	10 10 11
a) Les polymères de grande diffusion1 b) Les polymères techniques1 c) Les polymères spéciaux1	10 10 11 11

2.1. Monomères constitutifs11
-Le méthacrylate de méthyle11
-Comonomères classiques13
2.2. Différents PMMA13
a) PMMA choc
b) PMMA chaleur13
2.3. Production de polyméthacrylate de méthyle13
-Procédés de polymérisation14
a) Polymérisation radicalaire en suspension14
b) Polymérisation radicalaire en masse14
-Procédé plaques coulées14
-Procédé en masse continu15
Autres procédés de production15
-Procédé de concurrent15
3. Propriétés de polyméthacrylate de méthyle16
3.1. Propriétés physiques16
3.2. Propriétés mécaniques16
3.3. Propriétés chimiques
3.4. Propriétés électriques17
3.5. Propriétés thermiques17
3.6. Autres propriétés17
3.6.1. Propriétés dimensionnelles17
3.6.2. Charges et renforts18
3.6.4. Comportement au feu18
3.6.5. Vieillissement
4. Les avantages et les inconvénients18
4.1. Avantages de PMMA18
4.2. Inconvénients de PMMA18
5. Recyclage
6. Applications

Chapitre II : Vieillissement thermique des polymères isolants.

1. Définition du vieillissement thermique	20
2. Processus chimiques intervenant dans la dégradation thermique du PMMA	20
2.1. Processus de dégradation des polymères	20
a) Oxydation	20
b) Réticulation	20
c) Réactions de dépolymérisation	20
d) Autres mécanismes	21
3. Endurance thermiques	21

3.1. Position du problème	21
3. 2. Principe de la détermination de l'endurance thermique des isolants solides	22
3. 3. Choix des températures de vieillissement	24
3. 4. Durée de vie	24
3. 5. Vitesse de dégradation	25
4. Influence du vieillissement thermique sur les propriétés du PMMA	25

Chapitre III: Rupture diélectrique des isolants solides.

1. Grandeurs caractéristiques des milieux diélectriques	26
1. 1. Rigidité diélectrique	26
a) La rigidité intrinsèque	26
b) La rigidité pratique	26
Rigidité diélectrique longitudinale	26
Rigidité diélectrique transversale	27
1.1.1. Influence de divers paramètres sur la rigidité diélectrique	27
a) Tension appliquée	27
b) Epaisseur et homogénéité de l'éprouvette	27
c) La température	27
d) Caractéristiques électriques et thermiques du milieu ambiant	27
e) La qualité du matériau	27
1. 2. Permittivité diélectrique :	28
1. 3.Angle de perte	28
2. Mécanismes de claquage	28
a) Claquage électronique	28
b) Claquage thermique	29
c) Claquage électromécanique	29
d) Claquage pratique	29
3. Décharges partielles	30
a) Décharges superficielles	30
b) Décharges transversales	30
4. Arborescences	31
5. Rupture diélectrique	31
5. 1. Rupture dans les polymères	32
5. 1. 1. Rupture à court terme	33
a. Effet de la tension et du système d'électrodes	33
b. Effet de la température	34
c. Effet de l'épaisseur de l'isolant	34
5. 1. 2. Rupture à long terme	34

6. Modèle statistique de Weibull	36
6.1. Base et origine du modèle	36
6.2. Modèle à deux paramètres	37
6.3. Modèle à trois paramètres	37
6.4. Signification des paramètres	38
a. Paramètre de forme	38
b. Paramètre d'échelle	38
c. Paramètre de localisation	40
7. Application du modèle de Weibull à la rupture des isolants solides	40
8. Diagramme de Weibull	42
Conclusion	42

Chapitre IV : Etude expérimentale.

1. Echantillons	43
2. Dispositifs expérimentaux	43
2.1. Dispositif de vieillissement des éprouvettes	43
2.2. Mesure de la rigidité diélectrique	44
2.3. Dispositif de mesure des épaisseurs	47
3. Déroulement des essais	48
3.1. Conditionnement des échantillons	48
3.2. Essais de rigidité diélectrique	48
4. Résultats et discussion	50
4.1. Analyse statistique	50
4.2. Variation de la rigidité diélectrique en fonction du temps de vieillissement	53
Conclusion générale	54
Bibliographie	



Introduction

Les polymères sont souvent des matériaux synthétiques, quelquefois naturels. Ils se sont imposés par leur large gamme de propriétés et couvrent presque la moitié de l'utilisation dans tous les domaines. C'est ainsi que le domaine multidisciplinaire science et génie des matériaux est devenu un pilier indispensable du progrès de toute technologie.

La réalisation des objectifs communs de notre monde en développement est en grande partie tributaire de la mise au point de matériaux et procédés de transformation et d'assemblage nouveaux, présentant des performances inédites ou améliorées.

La réussite des efforts entrepris pour le développement de matériaux adaptés aux besoins de demain dépend d'une intégration de connaissances précises, de méthodes théoriques de modélisation et de précision du comportement, qui est une opération délicate et en plus particulièrement pour les isolants qui peuvent être soumis à plusieurs contraintes : thermiques, chimiques et électriques...etc. Ces contraintes peuvent influencer négativement sur les performances de ces diélectriques et par conséquent une dégradation progressive de leurs caractéristiques peut se produire.

Parmi les contraintes les plus sévères rencontrées en service, la contrainte thermique qui peut conduire à la réduction de la durée de vie suite au vieillissement d'un matériau. Le vieillissement thermique peut provoquer aussi la modification de sa structure, de ses propriétés diélectriques et mécaniques.

Le travail présenté dans ce mémoire consiste à étudier l'effet du vieillissement thermique sur la rigidité diélectrique du polyméthacrylate de méthyle (PMMA), connu sous le nom commercial de plexiglas. Cette étude comprend deux parties : une partie bibliographique et une autre réservée aux résultats expérimentaux.

Dans le premier chapitre, nous présentons le polyméthacrylate de méthyle : formulation, propriétés physiques, chimiques, mécaniques, ainsi que son utilisation, ...etc.

Le deuxième chapitre est consacré à l'étude du vieillissement thermique des polymères isolants.

Le troisième chapitre traite la rupture diélectrique des isolants solides: mécanismes de claquage, tenue diélectrique à court et à long termes et nous exposons le modèle statistique de Weibull et son application à l'étude de la rupture diélectrique des isolants solides.

Le quatrième chapitre est réservé aux essais réalisés : description du dispositif expérimental, méthodes d'essais et discussion des résultats obtenus.

Enfin nous terminons notre travail par une conclusion générale.



1. Généralités

1.1. Définition la matière plastique

On dit qu'une matière est plastique lorsqu'elle peut se déformer sous l'action d 'une force extérieure, puis conserver la forme ainsi acquise lorsque la force aura cessé d'agir, contrairement à la déformation élastique qui est seulement transitoire.

Toute fabrication réalisée par l'homme nécessite des matières premières qu'il lui faut bien emprunter aux richesses naturelles qui l'entourent : la synthèse des plastiques n'échappera pas à cette règle et parmi les substances naturelles auxquelles le fabricant de matières plastiques devra recourir : la cellulose, les macromolécules ou hauts polymères organiques ou semi organiques à caractère résineux, résultant le plus souvent d'une réaction naturelle ou artificielle de polycondensation ou polymérisation [1].

a. Polycondensation

La polycondensation est une opération qui s'effectue entre molécules de deux types différents, est une véritable réaction s'effectuant progressivement souvent même assez lente. Le résultat est un polycondensat présenté sous forme d'un réseau tridimensionnel autrement dit : thermodurcissable [1].

b. Polymérisation

On dit qu'il y a polymérisation lorsqu'on obtient à partir d'une molécule de base dite monomère, sous l'action de la chaleur et de la pression en présence d'un catalyseur (Oxygène), une plus grosse molécule, ou polymère qui résulte de la juxtaposition convenable de ce monomère. Généralement, on obtient des polymères sous forme de réseaux linéaires qui sont des thermoplastiques.

Si l'on désigne par M la molécule monomère, le schéma représentatif d'une polymérisation sera donc :

nM ____▶ Mn

Exemple : Par action de la chaleur sur l'acétylène, il est possible de transformer celle-ci au moins partiellement en benzène [1].

 $(C_2H_2)_3 \longrightarrow C_6H_6$

C. Copolymérisation

C'est un phénomène analogue à la polymérisation qui intervient dans certains cas particuliers lorsque deux molécules se polymérisent simultanément, il peut y avoir alors production d'une macromolécule mixte en quelque sorte mais cette fois avec élimination d'un tiers corps qui est souvent de l'eau mais ça peut être aussi un acide, un sel, un alcool ou une amine. Si l'on désigne par M_1 et M_2 les deux molécules différentes, le schéma représentatif de la copolymérisation est :

 $M_1+M_2 \longrightarrow M_1M_2$ [1].

1.2. Procédé de fabrication de la matière plastique

Les objets en plastique, les tuyaux, les films, les mousses...etc. sont obtenus à partir de polymères vierges sous forme de granulés, de poudre ou de résines visqueuses, que l'on transforme par des procédés mécaniques et thermiques. La transformation des thermoplastiques consiste à les fondre, les mettre dans une forme donnée par pression, puis à les refroidir. En ce qui concerne les thermodurcissables, on part d'un polymère, c'est-à- dire d'un polymère peu polymérisé, encore visqueux, que l'on met en forme par les mêmes procédés que les thermoplastiques, et l'on achève la polymérisation par cuisson et additifs chimiques.

a. Moulage par injection

La matière sous forme de granulés ou de poudre est fondue puis introduite sous pression dans un moule de forme donnée. Refroidie au contact des parois, elle se solidifie, puis l'objet est démoulé. C'est un procédé discontinu qui produit pièce par pièce. Dans une variante de ce procédé, du gaz est soufflé sous pression.

b. Extrusion

La matière est introduite en continu dans une machine comportant une vis dans un cylindre chauffé. En tournant, la vis comprime la matière fondue, et la pousse dans une filière dont la section a la forme du produit à fabriquer : tubes, profilés, films, plaques, enrobage de câbles. Contrairement au moulage, l'extrusion fabrique en continu des produits de longueur illimitée [2].

1.3. Définition de la macromolécule

Les macromolécules sont typiquement formées de plusieurs milliers de motifs structuraux simples appelés "mères"; du grec "meros" qui signifie "partie", liés entre eux par des liaisons primaires (liaisons covalentes) [3].

1.4. Caractéristiques physiques de la macromolécule

- a)- Grande longueur
- b)- Anisotropie

L'anisotropie de la molécule est due au fait que la connexion le long de l'axe de la chaine est assurée par des liaisons covalentes fortes, qui résultent du partage des électrons par le recouvrement des orbitales atomiques des éléments qui la composent,

tandis que la cohésion latérale entre des segments moléculaires est assurée par des liaisons secondaires faibles , aussi appelées forces de Van der Waals. Ceci conduit non seulement à une grande anisotropie de résistance et de la rigidité lorsque les segments d'un polymère ont une orientation préférentielle (dans un cristal par exemple), mais aussi à une anisotropie d'autres propriétés physiques, comme les propriétés optiques, diélectriques et thermiques.

c)- Souplesse

La souplesse des chaines résulte de la facilité avec laquelle les groupements et segments macromoléculaires peuvent effectuer des rotations autour des liaisons covalentes. Le comportement des chaînes, leur arrangement spatial et la viscoélasticité des matériaux polymères en dépendent directement [3].

1.5. Introduction aux polymères

Les polymères appelés communément ["]les plastiques^{",} sont indissociables de notre environnement et de notre vie pratique. Ils se sont imposés dans tous les domaines de nos activités, des objets les plus banals jusqu'à des applications techniques sophistiquées, en passant par leur utilisation dans les produits d'hygiène ou alimentaires. Le plus souvent synthétiques, quelquefois naturels, Ils doivent cet essor à leur large gamme de caractéristiques, durs, mous ou élastomères, transparents ou opaques, isolants et quelquefois conducteurs ,plus ou moins résistants aux conditions agressives de leur usage, toujours légers. C'est la nature particulière de leurs molécules en forme de chaines, ainsi que la variété des modes d'assemblages qu'elles adoptent, qui est à l'origine de cette diversité [2].

1.6. Définition des polymères

Au cours des années 1920, par diverses techniques d'analyse, il a été montré que les polymères sont constitués an niveau microscopique de très grandes molécules faites de l'enchainement d'un grand nombre d'une même séquence chimique appelée monomère (quelquefois d'un grand nombre de deux ou trois monomères différents).

Le nombre moyen de ces monomères dans les molécules finales (polymères) est le degré de polymérisation. Si ce nombre de degré de polymérisation est élevé, on parle de hauts polymères et lorsqu'il est faible, le composé est un oligomère. Les homopolymères ne sont constitués que d'un seul type de monomère dont le motif se répète dans la molécule; les copolymères sont constitués de plusieurs types de monomères.

Les monomères sont fabriqués à partir de molécules telles que le méthane, l'éthylène, le benzène, le butadiène provenant essentiellement de la distillation du pétrole, quelquefois du carbone, du gaz naturel, du bois ou d'autres substances végétales. Les polymères synthétiques sont fabriqués par la polymérisation. Dans une réaction de polymérisation, les monomères se lient en chaines qui croissent jusqu'à devenir géantes .En conséquence, elles ont reçu le nom de macromolécules [2].

1.7. Nomenclature des polymères

1.7.1. Homopolymères

Le nom d'un polymère est généralement constitué du préfixe Poly suivi du nom chimique :

— soit du monomère dans le cas où le polymère résulte d'une simple polymérisation.
 Exemples : polyéthylène, poly (chlorure de vinyle) ;

 — soit du motif structural unitaire du polymère lorsque ce dernier résulte de la polyaddition ou de la polycondensation de plusieurs monomères.

Exemples : poly (phénylène éther) ou PPE et poly (hexaméthylène adipamide) ou PA 6-6.

Exceptions : certains noms de polymères ne commencent pas par poly, en particulier :

tous les polymères cellulosiques

 toutes les résines à base de formaldéhyde (formol) : phénoplastes et aminoplastes

1.7.2. Copolymères

Les noms des copolymères sont constitués du préfixe poly, suivi, entre parenthèses, des noms chimiques des monomères donnés dans l'ordre décroissant des fractions massiques ou molaires de ces composants dans le copolymère, chaque monomère étant séparé des autres par une barre oblique.

Exemple : poly (styrène/butadiène/acrylonitrile) ou ABS

Remarque : On rencontre souvent dans la littérature technique et technico-commerciale les noms des polymères sans les parenthèses ci-dessus, ou sans les barres obliques indiquant qu'il s'agit de copolymères.

De même, certaines appellations consacrées par l'usage telles qu'acéto-chlorure de polyvinyle pour poly (chlorure de vinyle/acétate de vinyle) ou franco-anglaises telles que polyvinylchlorure pour poly (chlorure de vinyle) sont appelées à disparaître avec l'application de la nomenclature adoptée par certaines normes.

1.7.4. Remarque concernant la nomenclature :

Les noms courants des polymères sont de fait établis à partir de l'une ou l'autre des nomenclatures suivantes :

15

 – la nomenclature fondée sur le processus de formation du polymère qui mentionne le nom du monomère, précédé du préfixe poly non suivi de parenthèses (sauf si le nom du monomère est constitué de plusieurs mots).

Exemple 1 : polyéthylène — $(CH_2 - CH_2 -)_n$. **Exemple 2 :** poly (chlorure de vinyle).

– la nomenclature fondée sur la structure du polymère, qui mentionne le nom chimique de son motif constitutif (c'est-à-dire la plus petite unité chimique dont la répétition décrit le polymère régulier), précédé du préfixe poly suivi de parenthèses.

Exemple 3 : poly (méthylène) — $(CH_2 -)_{2n}$ (il s'agit du même polymère que celui déjà nommé dans l'exemple 1).

Exemple 4 : poly (paraphénylène téréphtalamide).



1.8. Historique des polymères

Le terme de polymère est très ancien puisque, dés 1866, Berthelot mentionnait que le styrolène (styrène actuel), chauffé à 200 °C pendant quelques heures, se transforme en polymère résineux. C'était probablement le premier polymère reconnu. Il n'en demeure pas que la notion de polymère, dans le sens que nous lui donnons aujourd'hui a dû attendre les années 1920, avec les travaux de Staudinger (prix Nobel 1953), pour être acceptée et ce n'est que au cours de la décennie suivante que la théorie [°] macromolécule[°] a définitivement triomphé de la théorie [°] micellaire[°] à laquelle elle était opposée.

Entre-temps, les polymères artificiels et synthétiques avaient conquis leur droit d'être cités et étaient utilisés comme succédanés de substances rares (celluloïde pour le remplacement d'ivoire, soie artificielle) ou comme matériaux présentant des propriétés nouvelles engendrant ainsi de nouvelles applications.

À la fin d la seconde guerre mondiale, les polymères avaient montré leur capacité à se substituer à de nombreux matériaux traditionnels mais n'avaient cependant pas réussi à se départir d'une réputation de qualité médiocre des objets qu'ils servaient à fabriquer. Des investigations, menées tant dans les laboratoires académiques que dans les centres de recherches industriels, ont abouti à des améliorations surprenantes de nombreuses propriétés et les polymères ont maintenant pénétré les secteurs les plus avancés de la technologie [5].

1.9. Structure des polymères

L'enchainement des monomères peut prendre plusieurs formes. Dans la plus simple appelée configuration linéaire, les monomères sont reliés en chaine les uns à la suite des autres. D'autres chaines moins régulières se ramifient en branches de longueur plus ou moins importante. Enfin ces branches sont bien développées et reliées les unes aux autres, les chaines sont interconnectées en réseau .Il en résulte une énorme molécule qui occupe les trois dimensions de l'espace.

La figure I. 1 montre les différentes structures de polymères.

Les polymères sont constitués d'un enchainement d'entités chimiques répétitives, les monomères (a), enchainés dans différentes configurations : linéaire (b), ramifiée (c), en réseau (d).

La longueur de la molécule et le nombre de monomères sont symboliques. En réalité, les monomères sont bien plus nombreux, de l'ordre de 100 à 20 000 ou plus.



Figure I. 1 : Différentes structures de polymères.

1.10. Classification des polymères

Une classification des matières plastiques est rendue nécessaire par le nombre très important de composés macromoléculaires actuellement commercialisés et par le développement extrêmement rapide de leurs applications dans presque tous les secteurs d'activité.

1.10.1. Classification selon leur comportement thermomécanique

On distingue trois grandes classes :

1. Les thermoplastiques

Aussi appelés les thermoplastes sont généralement solubles, formés de chaines plus ou moins linéaires distinctes bien compactées, liées entre elles par des seules liaisons secondaires (forces de Van der Waals, liaisons d'hydrogène ... etc.).

Selon la régularité de leurs chaines, ces polymères peuvent se cristalliser (thermoplastes semi-cristallins) ou (thermoplastes amorphes).

Etant donné la faiblesse des forces de Van der Waals, la majorité des thermoplastes se ramollissent ou fondent dans une plage de température sise entre 80 et 225°C.

2. Les thermodurcissables

Appelés aussi thermodurcis sont des solides infusibles et insolubles prennent forme sous l'effet de chaleur ou de la lumière, et forment un réseau tridimensionnel à partir de segments moléculaires liés entre eux par une densité élevée de liaisons primaires.

Les thermodurcis sont mis en forme de façon irréversible par réaction chimique des molécules d'un durcisseur avec les petites molécules d'une résine / ou avec des chaines linéaires.

La structure chimique de la résine de départ, le choix du durcisseur et le degré de réticulation influence l'ensemble des propriétés thermomécaniques des thermodurcis (température de transition vitreuse, résistance mécanique...etc.) [3].

Remarque : La véritable distinction entre ces deux classes des polymères provient du fait que dans le premier cas, les macromolécules restent chimiquement séparées les unes des autres après la mise en œuvre, ce qui permet au remoulage à discrétion.

Dans le deuxième cas, des petites molécules ou chaines linéaires sont réticulées pendant le durcissement. Elles sont reliées entre elles par des liaisons primaires et stables. L'échantillon forme ainsi une supère macromolécule (un réseau tridimensionnel), il ne peut plus être remoulé [3].

3. Caoutchoucs et élastomères

Les caoutchoucs ainsi que les polymères synthétiques appelés élastomères [2] sont des solides souples et gonflables formés de chaines peu compactées (à la température ambiante) et très mobiles [3]. Ce sont un autre cas de polymères amorphes utilisés au dessus de la température vitreuse (dont la macromolécule est le polyisoprène -60 °C, le polybutadiène -90 °C).

Le caractère élastique des élastomères cesse si l'on baisse la température en dessous de leur transition vitreuse : le polymère devient vitreux et cassant [2].

Leur propriété d'élasticité résulte de la libération des mouvements de translation des macromolécules, de sorte que de faibles sollicitations d'étirement provoquent des déformations importantes [2]. Pour assurer une stabilité de forme indispensable, diminuer leur propension au fluage et prévenir une souplesse excessive, les caoutchoucs sont généralement réticulés ; c'est à dire leurs chaines sont liées entre elles par des liaisons primaires et stables [3].

Le caoutchouc naturel est un polyisoprène provoquant de la saignée d'un arbre originaire d'Amazone (figure I. 2). Sa température de transition vitreuse est de -73 °C et sa température de fusion est de 25°C.

Figure I. 2 : Polyisoprène.

1.10.2. Classification selon leur origine [5] :

On peut les classer en trois catégories :

Les polymères naturels : sont issus d'un règne végétal ou animal : Leur importance est considérable. On peut cependant mentionner, dans cette catégorie, la famille des polysaccharides (celluloseetc.), celle des protéines (laine, soie...etc.).

Les polymères artificiels : sont obtenus par modification chimique des polymères naturels, de façon à transformer certaines de leurs propriétés ; les esters cellulosiques (nitrocellulose, acétate de cellulose...) ont toujours connu une certaine économique.

Les polymères synthétiques : totalement issus de la génie de construction de l'homme, sont obtenus par polymérisation de molécules monomères. Leur variété est extrême et ce sont eux qui sont les plus souvent considérés.

1.10.3. Classification selon leur domaine d'application

Il est difficile de proposer une classification exhaustive tant la variété des propriétés a multiplié les applications des polymères, comme matériaux particuliers. Il est cependant possible de regrouper les polymères en trois catégories [5] :

a) Les polymères de grande diffusion : encore appelés polymères de commodité, dont la production annuelle s'évalue par million de tonnes, sont devenus d'un emploi quotidien pour tous. Le polyéthylène, le polystyrène, le poly (chlorure de vinyle) et quelques autres sont à classer dans cette catégorie d'une importance économique considérable.

b) Les polymères techniques : Ils ont des caractéristiques mécaniques qui leur permettent de se substituer de plus en plus aux matériaux traditionnels (métaux céramiques....) pour de nombreuses applications ; les polyamides les polyacétals font parti de cette famille.

c) Les polymères spéciaux : ou polymères de fonction présentent généralement une propriété spécifique qui induit leur utilisation pour une application particulière. C 'est dans cette catégorie que se trouvent les polymères conducteurs.

2. Description générale de polyméthacrylate de méthyle

Le polyméthacrylate de méthyle (abréviation PMMA) est connu sous le nom commercial d'Altuglas ou plexiglas, c'est un polymère thermoplastique rigide, cassant et à structure amorphe dont le monomère est le méthacrylate de méthyle (MAM) .Sa température de transition vitreuse est de 105 °C .À cause de sa transparence et de sa brillance, il est souvent employé en vitre dans les bâtiments (parois, brise- vent, toiture), dans les enseignes publicitaires...etc.

Sa chaine macromoléculaire est linéaire avec des groupements latéraux volumineux (figure I. 3) [2].



Figure I. 3 : Chaîne macromoléculaire de PMMA.

2.1. Monomères constitutifs

-Le méthacrylate de méthyle est le monomère principal des polymères méthacryliques.



(Méthacrylate de méthyle)

-Il est préparé par deux procédés principaux :

-Transformation de la cyanhydrine de l'acétone en milieu sulfurique en sulfate de méthacrylamide, puis estérification après hydrolyse en présence de méthanol.

-Oxydation de l'isobuténe en méthacroleine puis en méthacrylate de méthyle [6].

Les réactions suivantes montrent le principe du procédé de production de méthacrylate de méthyle [7].

HCN + H₃C - CO - CH₃
$$\xrightarrow{[NaOH]}$$
 CH₃ - C - CN
(Acide cyhandrine) (Acétone) (Acétone) (Acétone) (Acétone)

$$CH_{3} \xrightarrow{(H_{2})}{(H_{3})} CH_{2} = C - CO - NH_{2} + H_{2}O$$

$$CH_{3} \xrightarrow{(Acétone cyanhydrine)} CH_{2} = C - CO - NH_{2} + H_{2}O$$

$$H_{3} \xrightarrow{(H_{3})}{(H_{3})} CH_{3}$$

(Méthacrylate de méthyle)

-Comonomères classiques [6] :

L'acrylate de méthyle ou l'acrylate de l'éthyle sont utilisés à faible teneur ($\leq 1 \%$) pour améliorer la stabilité de polyméthacrylate de méthyle. À forte teneur (1 % à 10 %), outre l'amélioration de la stabilité thermique, les comonomères permettent d'ajuster les conditions de transformation (injectabilité) et les propriétés mécaniques. L'acrylate de butyle peut également être utilisé dans certains cas. La polymérisation de ces comonomères conduit à des polymères méthacryliques, amorphes, transparents mais cassants.

2.2. Différents PMMA

a) PMMA choc :

Pour renforcer les propriétés choc du PMMA tout en restant transparent, on ajoute un élastomère à base d'acrylate de butyle préparé en polymérisation en émulsion dont l'indice de réfraction est proche du PMMA.

b) PMMA chaleur :

D'autres comonomères que ceux cités précédemment comme maléimide de cyclohexyle, l'anhydride maléique, ou l'acide méthacrylique sont utilisés pour améliorer la tenue thermique de la pièce finie.

2.3. Production du polyméthacrylate de méthyle [7] :

Le méthacrylate de méthyle sert essentiellement à produire le polyméthacrylate de méthyle (PMMA). La réaction de polymérisation est une polymérisation radicalaire amorcée par des radicaux libres formés dans le milieu à partir de composés tels que le peroxyde de benzoyle dont la décomposition peut être accélérée par la présence de certains réducteurs tels que la N, N- diméthylaniline. On a :

$$nCH_{2} = C - CO - O - CH_{3} \xrightarrow{[Init]} \begin{bmatrix} CH_{3} \\ I \\ -CH_{2} - C - \\ I \\ C \\ -CH_{2} - C - \\ I \\ C \\ -CH_{3} \end{bmatrix} n$$

(Polyméthacrylate de méthyle)



(Peroxyde de benzoyle)

(N.N-diméthylaniline)

Cette polymérisation se fait selon trois procédés classiques.

-Procédés de polymérisation [6] :

Le polyméthacrylate a été synthétisé pour la première fois vers 1900 par le Docteur Otto Röhm en Allemagne et a été introduit à l'échelle industrielle aux Etats Unis dans les années 1930.

Trois procédés sont actuellement utilisés :

a) Polymérisation radicalaire en suspension

La polymérisation a lieu en suspension dans l'eau et permet l'obtention de poudre. C'est un procédé discontinu qui impose la manipulation et le traitement d'importantes quantités d'eau, mais qui est toujours utilisé par certaines sociétés ayant apporté des améliorations (réticulation des eaux de filtrage). Il a été remplacé par les procédés masse pour la fabrication du PMMA et de ces copolymères.

b) Polymérisation radicalaire en masse

Il faut distinguer le procédé plaques coulées et procédé masse coulée : -Procédé plaques coulées

C'est l'un des procédés de fabrication du PMMA permettant d'obtenir des plaques ou des bacs de PMMA. La polymérisation s'effectue en deux étapes :

-Prépolymérisation du méthacrylate de méthyle (10 à 20 % conversion) pour obtenir un sirop ;

-Polymérisation du sirop entre deux glasses de verre dans une étuve ou dans une piscine. On obtient ainsi des plaques (2m x 3m) dont l'épaisseur varie de 1 mm à 20 mm.

-Procédé en masse continu

Ce procédé est l'un des plus utilisés. Les étapes en sont les suivantes :

-Préparation d'un mélange de MMA et de ses comonomères et ajout d'amorceur et d'autres ingrédients ;

-Refroidissement de la solution entre - 20 et - 40 °C ;

-Polymérisation en général dans un réacteur agité continu ou le taux de conversion est amené entre 50 et 60 % ;

-dévolatilisation par réchauffage rapide de la solution vers 210 °C et évaporation des monomères n'ayant pas réagi.

-la dévolatilisation peut se faire grâce à une extrudeuse ou un ^vdévolatiliseur flash^r. On obtient des granulés en fin de procédé. Les monomères évaporés sont condensés puis recyclés ou distillés pour alimenter le réacteur de mélange.

Autres procédés de production -Procédé de concurrent

Un procédé concurrent de production de méthacrylate de méthyle a été mis au point et est exploité au Japon par différentes firmes. La matière première de départ est soit l'isobutane, soit l'alcool tertiobutylique, on a [7] :

$$(CH_3)_2C = CH_2 + 3/2O_2 \xrightarrow{[250°C]} CH_2 = C - COOH + H_2O$$
(Acide molybdène)
$$(H_3)_2C = CH_2 + 3/2O_2 \xrightarrow{[250°C]} CH_2 = C - COOH + H_2O$$

(Isobutène)

(Acide méthacrylique)

$$(CH_3)_3C - OH + 3/2O_2 \xrightarrow{[250°C]} CH_2 = C - COOH + 2H_2O$$

$$(Acide molybdène) | CH_3$$

$$(Alcool tertiobutylique) (Acide méthacrylique)$$

Le catalyseur est un oxyde de molybdène, la température est de l'ordre de 250°C. L'acide méthacrylique est transformé en méthacrylate de méthyle par estérification par méthanol

en présence d'acide sulfurique. Cette méthode est intéressante puisqu'elle permet de l'affranchir de l'emploi d'ammoniac qui conduit à du sulfate d'ammonium comme coproduit. L'acide méthacrylique est transformé en méthacrylate de méthyle (MAM) par estérification par le méthanol en présence de l'acide sulfurique suivant la réaction [7] :

 $CH_2 = C - COOH \xrightarrow[H_3OH \times [H^+]] \rightarrow CH_2 = C - COOCH_3$ $CH_3 - H_2O \xrightarrow[H_2O]{CH_3} CH_3$

(Méthacrylate de méthyle)

3. Propriétés de polyméthacrylate de méthyle

3.1. Propriétés physiques [8] :

• Le PMMA est un polymère amorphe aux excellentes propriétés optiques et d'une transparence remarquable. (92 % de transmission lumineuse), dans le visible 380 à 780 nm (nm longueur d'onde λ).

L'absorption de lumière n'atteindrait que 50% pour une épaisseur de 3 mètres (si celle -ci était possible). L'angle de réflexion totale sur une surface intérieure est de 41 à 42° (ce qui permet la réalisation de ^{>>} conducteurs^{<<} de lumières, fibres optiques ...).

• Les plaques extrudées et donc non isotropes présentent un indice de réfraction différent suivant l'orientation de la lumière.

• Le PMMA peut aisément se colorer y compris dans des teintes fumées pour vitrages.

3.2. Propriétés mécaniques [8] :

• Le PMMA est un polymère amorphe dont la température de transition vitreuse est de 110 à 135 °C (pour les hautes masses molaires), c'est à dire qu'à température ambiante, il est dur, rigide, cassant avec faible allongement.

• Le PMMA est hygroscopique et dans des conditions extrêmes, l'eau absorbée agira comme un plastifiant et modifiera les propriétés du matériau.

• Fluage: son fluage est assez limité. Au-delà de contrainte critique, le PMMA est sujet au fendillement. Ce phénomène est même accentué en présence d'agent agressif (alcools, essences....).

• Choc: la résistance au choc est relativement faible et le polymère est cassant. Celle –ci peut être améliorée par l'adjonction d'agent antichoc.

• Dureté: le PMMA résiste bien à la rayure dans des conditions normales d'usage. Cependant, lors de nettoyages fréquents ou d'utilisation en milieu poussiéreux, il peut se rayer. Le PMMA se polisse facilement. Le PMMA est caractérisé par les caractéristiques mécaniques suivantes [6] :

- ✓ Contrainte maximale à la traction: 65 à 70 MPa.
- ✓ Allongement à la rupture: 5 à 6%.
- ✓ Contrainte maximale à la flexion: 97 à 103 MPa.
- ✓ Module d'élasticité en flexion: 2900 à 3300 MPa.
- ✓ Contrainte maximale de compression: 97 à 117 MPa.

3.3. Propriétés chimiques [8] :

• Le PMMA est insipide et sans odeur et peut, dans certains cas, être reconnu de qualité alimentaire.

• Jusqu'à 60 °C le PMMA résiste assez bien aux acides organiques et minéraux dilués ainsi qu'aux solutions alcalines diluées mais il est attaqué par les produits courants et quelques agents agressifs (acétone, benzène, carburant d'avion...etc.).

• Sa résistance au vieillissement lumière est très bonne.

3.4. Propriétés électriques [8] :

• Les propriétés électriques peuvent être nettement affectées par la reprise d'humidité.

• Sa résistance à l'arc est excellente.

• Le PMMA est électrostatique, ce qui peut nuire à sa présentation (attraction de poussière) ; on peut pallier cet inconvénient en utilisant des produits antistatiques.

Le PMMA est caractérisé par les caractéristiques électriques suivantes [6] :

- ✓ Rigidité diélectrique: 19, 7 MV/m.
- ✓ Constante diélectrique sous 50 Hz: 3,7.
- ✓ Résistivité superficielle: >10¹⁴ Ω.
- ✓ Résistivité volumique: >10 ¹⁵ Ω /cm.

3.5. Propriétés thermiques [8] :

• Le PMMA est combustible et brûle sans fumée excessive.

• Son retrait au moulage est faible (0,4 % à 0,7 %) comme pour les polymères amorphes.

• Son coefficient de dilatation linéaire étant très différent de celui des métaux et son élasticité faible, il sera déconseillé de prévoir des inserts métalliques dans une pièce en PMMA injecté.

• La température maximale d'utilisation est faible < 80 °C.

3.6. Autres propriétés

3.6.1. Propriétés dimensionnelles [8] :

• La reprise d'humidité reste néanmoins lente.

• Même si l'absorption d'eau du PMMA reste minime, une pièce peut présenter des variations dimensionnelles importantes.

3.6.2. Charges et renforts

Le PMMA n'est ni chargé (sauf antistatique et colorant) ni renforcé pour conserver sa transparence [8].

3.6.4. Comportement au feu

Les polyméthacryliques sont facilement combustibles, mais ils peuvent être additivés par des agents ignifugeants pour des applications dans le bâtiment notamment. Même s'ils sont combustibles, leur combustion se fait sans dégagement de gaz nocifs (et cette combustion se fait sans goutter) [6].

3.6.5. Vieillissement

La résistance des PMMA (standard ou choc) à une exposition prolongée à l'extérieur est exceptionnelle et de nombreuses applications se sont développées à l'extérieur comme dans le bâtiment, dans l'automobile ou l'enseignement

4. Les avantages et les inconvénients

4.1. Avantages de PMMA [8] :

- Transparence exceptionnelle.
- Bonne tenue aux rayons ultra-violets.
- surface brillante.
- Thermoformage aisé.
- Possibilité de coulée.
- Facile à coller.

4.2. Inconvénients de PMMA [8] :

- cassant, fragile, rayable.
- tenue en température limitée (80°C).
- Résistance chimique très moyenne.

5. Recyclage

Le PMMA peut être fondu puis remoulé, mais c'est surtout par dépolymérisation qu'on peut le recycler facilement par chauffage. Le PMMA redonne son monomère de départ : le MAM. Celui-ci peut alors être réutilisé pour une nouvelle polymérisation [9].

6. Applications [8]

• Plaques pour vitres, hublots, vitrines, coulées pour présentation d'objets inclus, appareil de dessin (équerres), matériaux pour faire de grands aquariums, cadrant téléphoniques, fibres optiques, lentilles d'appareils photos, meubles modernes et plusieurs applications dans les différents domaines [9] :

• L'électrotechnique : pour des applications telles que les condensateurs, supports divers...etc.

- L'optique et l'électronique : les fibres optiques (l'automobile, avion, l'informatique...etc).
- L'aéronautique : utilisé dans les verrières, hublots, capots d'avion.



Ce présent chapitre s'étend sur un large domaine d'études en science des matériaux. Elle doit nous donner tout d'abord les processus chimiques du vieillissement thermique et surtout déterminer les évolutions microstructurales qui sont susceptibles d'influencer sur le comportement physique et mécanique des polymères. Ensuite il faut s'intéresser aux propriétés électriques et mécaniques de ces matériaux qui s'évoluent avec le vieillissement. Ces évolutions s'étudient grâce à des techniques expérimentales de caractérisation.

1. Définition du vieillissement thermique

Le vieillissement thermique est une détérioration irréversible des caractéristiques d'un système isolant. Ces changements mettent l'isolant en risque prématuré dans le temps. Le vieillissement est donc lié à la fonction de l'isolant qui est différemment affecté selon les conditions d'utilisation. L'isolant subira différents niveaux de vieillissement selon l'influence de facteurs multiples tels que la température, la contrainte électrique, le milieu ambiant [10].

2. Processus chimiques intervenant dans la dégradation thermique du PMMA 2.1. Processus de dégradation des polymères

Ces processus sont nombreux. Les travaux de B. Fallou [11] permettent de les regrouper :

a) Oxydation

En présence d'air, il se produit un processus d'oxydation. Cette oxydation a pour conséquence la formation de produits acides qui augmentent la conductivité ainsi que la rupture de chaines qui est responsable de l'augmentation de la charge a la rupture.

b) Réticulation

Le processus d'oxydation s'accompagne généralement d'un effet de réticulation ou de pontage entre des chaines voisines qui réduit la souplesse de l'isolant, le rendant ainsi cassant.

c) Réactions de dépolymérisation

Des réactions de dépolymérisation peuvent prendre naissance même en l'absence d'oxygène. L'évaporation de produits de scission de plus bas poids moléculaire a une double conséquence : d'une part un rétrécissement du matériau et d'autre part la formation de produits volatils susceptibles d'être à l'origine de décharges partielles dans les isolants à haute tension.

d) Autres mécanismes

Aux mécanismes que nous venons de citer peuvent s'ajouter d'autre effets que l'on peut considérer comme secondaires. Parmi ces effets, nous pouvons citer les cas suivants : une hydrolyse et une incompatibilité chimique entre deux constituants ou une altération due à la présence de solvants insuffisamment évacués.

3. Endurance thermiques

3.1. Position du problème

Certains auteurs comme B. Fallou [12] et E. Moriane [13] sont intéressés à l'étude de l'endurance thermique des polymères.

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

– Pendant quel temps t, peut- on maintenir un matériau isolant sous une contrainte C_0 ?

– Si l'on désire une durée de maintien ou durée de vie donnée t_0 , quelle contrainte maximale sera autorisée ?

Pour y répondre, il suffit de déterminer la caractéristique de la variation d'une propriété du matériau en fonction du temps de vieillissement pour différentes valeurs C_1 , $C_2...C_n$ de la contrainte appliquée (figure II.1) [14]. La propriété peut être une propriété électrique (rigidité diélectrique par exemple) ou une propriété mécanique (allongement à la rupture par exemple).



Figure II. 1 : Variation d'une propriété P en fonction du temps de vieillissement pour différentes valeurs de la contrainte C.

Si l'on fixe une valeur de la propriété P_0 choisie en fonction des critères d'emploi, on obtient la relation C(t) relative à la valeur de la propriété P_0 (figure II. 2) [11]. Cette courbe est appelée courbe de la durée de vie. La contrainte peut être la température, la tension ou le champ électrique.



Figure II. 2 : Relation contrainte – temps.

3. 2. Principe de la détermination de l'endurance thermique des isolants solides

Les travaux relatifs à l'endurance thermique des matériaux isolants solides ont pour objet la mise au point de méthodes générales de détermination de leur stabilité. Le but de ces essais est de simplifier les résultats et les exploiter sous forme d'indices de températures attribués aux matériaux pour leurs propriétés mécaniques d'une part et pour leurs propriétés électriques d'autre part [14].

En ce qui concerne les essais, on soumet les matériaux à l'action prolongée de la chaleur puis on détermine l'évolution d'une ou plusieurs de leurs propriétés en fonction du temps de vieillissement, ce qui permet de tracer les caractéristiques P = f(t) (figure II. 3) [11].



Figure II.3 : Variation de la propriété P en fonction du temps de vieillissement pour différentes températures.

Le choix d'une valeur limite de la propriété P_1 permet de déterminer les temps pour lesquels cette limite est atteinte ou durée de vie et ceci pour plusieurs températures de vieillissement. En répétant les essais, on peut tracer la courbe d'endurance thermique ou durée de vie t= f (1/T) (figure II.4) [11].



Figure II.4 : Courbe d'endurance thermique d'un isolant solide.

Généralement on s'intéresse à l'indice de température qui est, par définition, le nombre égal à la température exprimée en degré Celsius qui correspond sur le graphique d'endurance thermique, à un temps donné normalement égal à 20 000 h. Certains chercheures font des vieillissements très accélérées (VTA) qui se font en un temps de 500 h au lieu de 5 000 h soit une division par 10 [12].

3. 3. Choix des températures de vieillissement

La C.E.I.216-1 fixe un minimum de 3 températures différentes chacune de la plus voisine de 20 °C et tel que le critère de dégradation soit atteint [15] :

– En un temps inferieur à 100 h pour la température la plus élevée.

– En un temps inférieur à 5 000 h pour la température la plus basse.

3. 4. Durée de vie

L'effet de la température sur les isolants électriques a été examiné en 1930 par Montsinger qui a présenté une formule empirique décrivant la réduction de la durée de vie pour un accroissement de 8°C de la température du papier utilisé comme isolant dans les transformateurs [16].

La durée de vie est le temps nécessaire pour qu'une propriété techniquement importante atteigne une valeur limite telle que le matériel puisse encore fonctionner de façon satisfaisante [17].

La duré de vie t d'un matériau isolant solide en fonction de la température de vieillissement est donnée par une relation de type Arrhenius [18] :

$$Ln t = A + (E/RT)$$
(II.1)

avec :

A : Constante caractéristique du matériau.

R : Constante des gaz parfaits.

T : Température absolue.

E : Energie d'activation du phénomène.

D'autres auteurs ont proposé une relation analogue à (II.1) [29] :

$$t = C \exp (B/T)$$
(II.2)

avec :

C, B : Constantes caractéristiques du matériau.

T : Température absolue.

La caractéristique Ln t en fonction de (1/T) est généralement une droite qui, dans certains cas, peut avoir une cassure.

D'une manière générale, on peut admettre pour le matériel des durées de vie de 25 à 30 ans pour une utilisation annuelle de 2 000 à 7 500 h environ. Pour du matériel plus petit, des durées de vie de 20 000 à 100 000 h sont probablement plus réalistes [19].

3. 5. Vitesse de dégradation

Dans un domaine expérimental restreint, on peut considérer que la vitesse de dégradation V des polymères varie avec la température de vieillissement T selon la loi d'Arrehenius. Cette vitesse est donnée par la relation suivante [20]:

$$V = V_0 \exp.(-E/RT)$$
 (II.3)

avec :

E : Energie d'activation du phénomène.

- R : Constante des gaz parfaits.
- $V_0\ :$ Constante.
- T : Température absolue.

La vitesse de dégradation est aussi donnée par une relation identique à (II.3) [20]:

$$Ln V = -A/T + B$$
(II.4)

avec :

A, B : Constantes caractéristiques du polymère.

T : Température absolue.

La dégradation est d'autant plus rapide que la température est élevée.

4. Influence du vieillissement thermique sur les propriétés du PMMA

Pendant la dégradation des polymères, des réactions chimiques telles que l'oxydation, l'hydrolyse, les ruptures de chaines, la réticulation et les pertes de plastifiants peuvent influencer sur la plupart de leurs propriétés (charge à la rupture, conductivité, facteur de pertes diélectriques, rigidité diélectrique, etc....) [14, 12].


1. Grandeurs caractéristiques des milieux diélectriques

1. 1. Rigidité diélectrique

La rigidité diélectrique d'un matériau est la valeur maximale du champ électrique que l'on peut lui appliquer sans qu'il se produise une dégradation irréversible nommée claquage ou perforation diélectrique rendant impossible une nouvelle application de la tension. En pratique, la rigidité diélectrique est le rapport entre la tension de claquage et la distance entre les électrodes auxquelles cette tension est appliquée dans des conditions d'essai spécifiées. Pour que cela soit tout à fait exact, il conviendrait que le champ soit uniforme, c'est –à –dire que les électrodes soient planes et parallèles avec des bords tels qu'ils ne provoquent en aucun point de renforcement du champ. Suivant les positions relatives des électrodes et des facteurs comme la température, la présence d'humidité ou de contaminants, la géométrie, le volume d'isolant...etc on distingue [22] :

a) La rigidité intrinsèque

Pour approcher la rigidité diélectrique intrinsèque d'un matériau, il est important de travailler en champ électrique le plus uniforme possible tout en évitant les effets de bords, de réduire le nombre de défauts présents dans le volume du matériau soumis au champ et d'éviter tout défaut aux interfaces, électrodes-matériau. De telles conditions sont très difficiles à réaliser. La rigidité diélectrique obtenue pour les meilleurs polymères est comprise entre 500 et 1000 kV/mm [22].

b) La rigidité pratique

La rigidité diélectrique pratique est généralement obtenue en appliquant la procédure décrite dans la norme CEI 243 [22]. Cette norme comporte trois parties qui sont à appliquer respectivement selon que l'on s'intéresse à la rigidité en tension alternative, en tension continue, ou en onde de choc, comme elle décrit deux grandes familles de méthodes d'essais, selon que le champ est appliqué perpendiculairement à la surface (ou aux strates) du matériau (on parle alors de rigidité diélectrique transversale) ou parallèlement à cette surface (rigidité diélectrique longitudinale).

- Rigidité diélectrique transversale

Les différents types d'électrodes sont à choisir selon que l'on veut essayer des matériaux en plaques, en films, en tubes (souples ou rigides), à couleurs ...etc. Le champ électrique est appliqué perpendiculairement à la surface de matériau [22].

- Rigidité diélectrique longitudinale

Le champ électrique en tension continue est appliqué parallèlement à la surface du matériau, elle est obtenue entre deux électrodes situées sur une même surface de l'isolant [22].

1.1.1. Influence de divers paramètres sur la rigidité diélectrique

a) Tension appliquée

La rigidité diélectrique en tension continue est souvent proche de celle en tension alternative (valeur efficace) multipliée par $\sqrt{2}$. On remarque que le rapport entre la rigidité diélectrique en onde de choc de foudre (1,2/50 µs) et celle mesurée en tension continue est de l'ordre de 2 [22]. On constate expérimentalement que l'augmentation de la vitesse d'application de la tension augmente la tension de claquage [22].

b) Epaisseur et homogénéité de l'éprouvette

L'augmentation de l'épaisseur de l'éprouvette réduit la valeur de la rigidité diélectrique. On constate alors que la tension de claquage est proportionnelle à l'épaisseur. Il est donc indispensable de donner, avec toute valeur de rigidité diélectrique, l'épaisseur des éprouvettes d'essai [22].

c) La température

La température a pour effet, lorsqu'on l'augmente, de réduire la rigidité diélectrique. Cela à différentes origines telles que l'augmentation de la conduction, l'obtention d'un claquage thermique, voir d'un claquage électromécanique [22].

d) Caractéristiques électriques et thermiques du milieu ambiant

Ces caractéristiques interviennent par le biais des décharges superficielles qui peuvent se produire dans ce milieu, et en particulier dans l'air, et réduisent la tension de claquage. La permittivité et la résistivité du milieu ambiant ont également une très grande influence en modifiant la répartition du champ électrique. Une augmentation de la permittivité et /ou une diminution de la résistivité du milieu ambiant augmentent généralement la tension de claquage de l'éprouvette [22].

e) La qualité du matériau

La présence d'impuretés, d'humidité, d'air ou de gaz dans l'isolant diminue fortement la rigidité diélectrique [23].

1. 2. Permittivité diélectrique :

Dans le cas (purement théorique) d'un diélectrique parfait, la permittivité ε_r se définit comme le rapport entre la capacité C_x d'un système d'électrodes immergées dans le diélectrique et la capacité C_v de même configuration d'électrodes dans le vide $\varepsilon_r = \frac{C_x}{C}$.

Il s'agit d'un nombre sans dimension. La permittivité absolue est le produit de la permittivité relative ε_r par la constante diélectrique du vide :

 $\mathcal{E} = \mathcal{E}_r \cdot \mathcal{E}_0$

Avec: $\varepsilon_0 = \frac{1}{36\pi} \cdot 10^{-9} F/m = 8,85 \cdot 10^{-12} F/m$

La permittivité relative du vide est donc égale à 1, celle des gaz est très proche mais très légèrement supérieure à 1 (1,00053 pour l'air) et celle des diélectriques utilisés en pratique est comprise entre 2 et plusieurs milliers [24].

1. 3.Angle de perte

Le facteur de dissipation diélectrique est égal au quotient $\frac{\mathcal{E}_r}{\mathcal{E}_r}$, ce quotient est

également appelé tangente de l'angle de pertes ou tan δ , δ est l'angle complémentaire du déphasage entre la tension appliquée au diélectrique et le courant qui en résulte.

Le produit $\varepsilon_r \tan \delta = \varepsilon_r^{"}$ est appelé indice de pertes car il caractérise l'énergie dissipée dans le diélectrique

2. Mécanismes de claquage

On appelle claquage, la perte subite de la propriété isolante d'un diélectrique soumis à un champ électrique [25]. Les mécanismes responsables des claquages permettent de classer ces dernières en quatre catégories : le claquage électronique, le claquage thermique, le claquage électromécanique et le claquage pratique.

a) Claquage électronique

Le claquage est produit par des électrons présents dans le matériau dont l'origine peut être soit l'injection cathodique par effet tunnel, soit l'ionisation stimulée par l'effet Poole- Frenkel, ou encore les rayons cosmiques. La distribution d'énergie de ces électrons augmente avec le champ appliqué, et à partir d'une valeur critique de ce champ (rigidité diélectrique), des électrons sont produits en nombre suffisant pour entraîner la destruction du réseau appelée claquage [22].

b) Claquage thermique

Lorsque l'on applique un champ électrique à un matériau isolant, on sait qu'un courant (généralement très faible) circule entre les électrons.

La circulation de ce courant dans le matériau a pour conséquence un transfert d'énergie qui échauffe le matériau. Cet échauffement doit être compensé par les pertes thermiques par conduction dans le matériau pour que l'équilibre soit conservé [22].

L'équilibre entre la dissipation thermique et l'énergie prise au champ est décrit par l'équation différentielle suivante [38] :

$$C_{v} \cdot \frac{\partial T}{\partial t} - div \left(K gradT \right) = \sigma E^{2}$$

Avec :

 C_v : Chaleur spécifique (J/kg°C).

- K : Conductivité thermique (W/m°C).
- σ : Conductivité électrique (1/ Ω).
- E : Champ électrique appliqué (V/m).
- t : Temps d'application du champ électrique (s).
- T : Température (°C).

c) Claquage électromécanique

La théorie de ce type de claquage est due à Stark et Garton [22]. Elle prend en compte l'effort électrostatique qui tend à rapprocher deux électrodes entre lesquelles est appliquée une différence de potentiel. Cet effort comprime l'isolant solide placé entre les deux électrodes. Le claquage survient lorsque cet effort de compression dépasse la résistance mécanique du matériau qui dépend de son module d'Young.

d) Claquage pratique

Dans la pratique, le claquage diélectrique des isolants solides survient le plus souvent à des valeurs de champ électrique très inférieures à celles prévues par les théories précédentes. La raison en est que le claquage se produit toujours au point le plus faible du volume de l'isolation soumise au champ [22]. Ce point correspond généralement à la présence de défauts comme :

- Les inclusions gageuses ;
- Les parties d'électrodes à faible rayon de courbure (bord ou pointes) ;
- Les inclusions solides.

Le claquage peut également se produire à partir de :

-Décharges partielles ou décharges superficielles ;

-Arborescences électriques ou électrochimiques.

3. Décharges partielles

On appelle décharge partielle, toute décharge électrique dont le trajet se développe sur une partie seulement de l'intervalle isolant séparant les conducteurs. Elle se manifeste de façon localisée au sein même du diélectrique, au voisinage des électrodes, à l'intérieur de petites bulles gazeuses emprisonnées dans la structure isolante ou au voisinage de discontinuités où le champ est très inhomogène [26].

La figure III.2 montre quelques exemples de lieux où peuvent se produire les décharges partielles. Le courant véhiculé par les décharges partielles ne représente généralement qu'une petite fraction du courant de déplacement [26].



Figure III.2 : Quelques exemples de lieus où peuvent se produire des décharges partielles [26].Elles représentent l'origine la plus importante de dégradations subies par les matériaux diélectriques dans une isolation soumise à une haute tension. On peut distinguer deux types principaux de décharges auxquelles sont soumis les matériaux dans les isolants en service [22] :

rendant le champ très inhomogène

a) Décharges superficielles

Elles prennent naissance entre le conducteur et l'isolant. Le champ électrique donnant lieu à cette décharge a sa composante principale tangentielle à la surface du matériau.

b) Décharges transversales

Elles se situent soit dans une zone en contact avec un conducteur, soit au sein même de l'isolant. La décharge est essentiellement imputable à la surface libre de l'isolant solide.

Divers facteurs influencent l'apparition des décharges partielles, d'une part, la permittivité relative des isolants solides étant toujours plus élevée (2 à 6) que celle des gaz ($\varepsilon_r = 1$). D'autre part, la rigidité diélectrique des gaz est nettement plus basse que celle des isolants solides (environ 10 fois moins). Ces deux facteurs font apparaître les vacuoles des isolants solides pour des tensions 20 à 60 fois plus faibles que celles qui entraîneraient la perforation du diélectrique [27].

Pour détecter les décharges partielles, on peut mentionner les méthodes acoustiques et optiques, utilisant généralement des microphones et des oscilloscopes. Mais il y a des résultats expérimentaux dans lesquels le vieillissement s'est poursuivi en totalité en l'absence des décharges partielles [28].

Il existe une corrélation étroite entre la tension seuil d'apparition des décharges partielles et l'évolution des arborescences. A chaque forme d'arborescences correspond une allure distincte de l'évolution dans le temps de la tension seuil d'apparition des décharges partielles [28].

4. Arborescences

Un phénomène indésirable affectant les isolants solides est le phénomène de dégradation par arborescence. Selon le fascicule de documentation FDC 26-204 (février 1986) l'arborescence consiste en un réseau de canaux tubulaires en forme d'arbre dans un matériau diélectrique solide, formé par un mécanisme de dégradation résultant de gradient de champ électrique élevé et non uniforme, ou de décharges partielles [29].

Le champ par arborescence dans les polymères est connu depuis l'année 1951 alors que plusieurs études ont été consacrées à ce phénomène apparaissant dans les isolants synthétiques comme l'origine de dégradations localisées dans les isolants.

Les claquages par arborescence sont assez peu nombreux, mais le phénomène est toujours considéré comme dangereux [29].

5. Rupture diélectrique

La rupture d'un diélectrique dépend du champ électrique appliqué à l'isolant, ainsi que de la distance interélectrode. Cette même rupture dépend aussi de la nature du matériau utilisé comme isolant et de la température à laquelle il est soumis.

Dans des conditions normales d'utilisation, le bon fonctionnement d'un isolant peu être perturbé par différents types de rupture. Le phénomène peut s'analyser à partir de l'allure dite, courbe en baignoire présentée à la figure III. 3. Cette courbe traduit les variations du taux d'avarie en fonction du temps du risque de rupture d'un isolant solide.



Figure III. 3 : Allure de la caractéristique du risque de rupture d'une isolation solide au cours du temps [30].

•La zone (a) correspond aux accidents liés à des défauts extrinsèques dits de jeunesse, qui surviennent juste après la mise sous tension.

• La zone (b) rend compte, dans le temps plus ou moins prolongé, l'effet des défauts intrinsèques du matériau. Ces ruptures sont purement aléatoires.

•La zone (c) correspond au vieillissement réel du matériau qui voit de nouveaux défauts se générer sous l'action des contraintes qu'il subit.

5. 1. Rupture dans les polymères

Contrairement à des isolants gazeux ou liquides, la rupture des polymères a bien un caractère irréversible et conduit donc à la mise hors service définitive du système isolant. Dans des conditions normales d'utilisation, le bon fonctionnement d'un isolant peut être perturbé par différent types de rupture.

• La rupture est un phénomène aléatoire : pour les échantillons issus d'un même diélectrique présentant le même conditionnement expérimental, nous n'obtenons pas un champ de rupture unique, mais une distribution de valeurs [22]. Le phénomène est bien décrit, au moins pour les solides, par les statistiques de Weibull. Le caractère statique s'explique par l'existence de fluctuations microscopiques locales dans le diélectrique [22].

• La rupture est un phénomène localisé qui se traduit par la formation de canaux qui se propage à travers le diélectrique. C'est la densité du diélectrique qui détermine si les chemins de rupture sont temporaires ou permanents [31].

5. 1. 1. Rupture à court terme

Lorsqu'un polymère est soumis à un champ électrique croissant on constate expérimentalement que les temps de rupture restent inférieurs à la minute [32].

Il existe deux groupes de théories dans le domaine de la rupture à court terme, à savoir la rupture électrique et la rupture thermique. Le stade ultime de tout mécanisme de rupture est un processus thermique. Ce sont les mécanismes initiateurs de rupture qui provoquent l'accroissement de la conductivité qui sont différents :

• Dans le cas de la rupture d'origine thermique, l'augmentation initiale de la conductivité est provoquée par une élévation locale de la température.

• Dans le cas de la rupture d'origine électrique, divers processus qui dépendent directement de la valeur du champ électrique sont à l'origine de l'augmentation de la conductivité.

Deux théories sont développées pour expliquer ce processus [32] :

• La théorie de la rupture intrinsèque ou électronique où l'équilibre énergétique électrons- photons n'est plus respecté : une petite augmentation du champ électrique va très rapidement provoquer le claquage,

• La théorie de rupture par avalanche envisage le claquage comme conséquence d'une multiplication des porteurs crées par ionisation autour du point d'impact de la décharge [22].

La tenue diélectrique des polymères dépend de plusieurs facteurs [33] :

a. Effet de la tension et du système d'électrodes

La tension de rupture dépend [33] :

1. De la distance interélectrode.

2. De la géométrie des électrodes qui détermine la configuration du champ électrique.

3. De la forme de l'onde de tension, de la fréquence et de son mode d'application de la tension par palier ou rampe. Des essais effectués sur des échantillons de câbles ont montré que la tension de claquage est plus importante en continu qu'en alternatif.

4. Souvent du métal des électrodes.

5. De l'état de surface des électrodes.

b. Effet de la température

L'allure générale de la dépendance en température de la rigidité diélectrique en courant continu pour des polymères non polaires, tel que le polyéthylène montre 3 régions (figure III. 4). On observe une décroissance de la rigidité diélectrique des basses températures vers les hautes températures [33].

c. Effet de l'épaisseur de l'isolant

Généralement le champ de claquage diminue quand l'épaisseur augmente. La rigidité diélectrique d'un matériau est liée à l'épaisseur e de l'isolant par la relation suivante [33] :

 $E = K \cdot e^{-n}$

où :

K : Constante dépendant des conditions de mesure, de la géométrie et des propriétés des électrodes.

n : Constante. 0,5<n<0,7 suivant le matériau considéré.





5. 1. 2. Rupture à long terme

Il est difficile de faire une distinction entre le claquage à court terme et le claquage à long terme. Il n'est pas aisé de définir cette frontière temporelle. Dans le cas de la rupture à long terme, on parle plutôt de vieillissement électrique du matériau. La rupture à long terme peut être différée dans le temps, de quelques secondes à quelques heures voir quelques années [30]. Le problème de la rupture se résumant à un transfert d'énergie entre le champ électrique et les porteurs de charge, une théorie de rupture à long terme

doit expliquer comment sous un champ relativement faible, les porteurs peuvent gagner l'énergie de quelques électrons-volts nécessaire à la rupture des liaisons dans un isolant. Un modèle a été développé par Jonscher et Lacoste qui s'applique aussi bien à la rupture aux temps courts qu'aux temps longs.

Les différentes étapes du processus sont [22] :

Stade 1

Le matériau est en équilibre sous champ faible ou nul. En moyenne, le champ électrique n'a aucune action sur structure : s'il y a création de défauts, ils le sont sous forme métastable. La structure peut donc revenir à son état initial.

Stade 2

Le champ est suffisant pour créer de nouveaux défauts à partir de défauts initiaux de façon irréversible. Ce processus entraîne une augmentation de la densité de charges au sien du matériau.

Stade 3

Sous l'action combinée du champ électrique et du temps, la densité de défauts est telle que la probabilité pour qu'ils se groupent en amas n'est pas nulle.

Stade 4

Les porteurs dont le libre parcours moyen est de plus grand, au sein de ces amas, sont susceptibles d'acquérir des énergies importantes donc de produire des défauts de dimensions plus importantes qui peuvent apparaître sous forme d'arborescences par exemple.

Stade 5

La rupture se fait selon un mécanisme de percolation entre les amas des défauts. Ce modèle présente l'évaluation de la rupture à travers les défauts initiaux.



Figure III. 5 : Modèle proposé par Jonscher et Lacoste intégrant une action cumulative du champ et du temps [33].

6. Modèle statistique de Weibull

6.1. Base et origine du modèle

A l'origine, le modèle statistique de Weibull a été établi en mécanique. Il exprimait la probabilité de rupture d'une chaîne en fonction de la probabilité de rupture d'un maillon [34]. La rupture d'une chaîne se produit au niveau de son maillon le plus faible quelques soient les qualités des autres maillons [32]. Ainsi la probabilité de rupture P_n d'une chaîne de n maillons s'exprime en fonction de la probabilité P d'un seul de ces maillons de la façon suivante :

$$P_n = P^n$$
 (III.1)

Le modèle statistique de Weibull ou la loi de chaîne s'écrit [34] :

$$P(x) = 1 - \exp\left[-\left(\frac{x - x_s}{x_0}\right)^{\alpha}\right] \qquad \qquad x > 0 \qquad (III.2)$$

avec :

P(x) : Probabilité de rupture.

- *x* : Variable aléatoire.
- x_0 : Paramètre d'échelle.
- *x*_s : Paramètre de localisation.

lpha : Paramètre de forme.

Suivant que la valeur de x_s est nulle ou non, on distingue deux cas suivants [35]:

6.2. Modèle à deux paramètres

C'est le cas où $x_s = 0$ par conséquent P(x) s'annule pour x = 0, l'expression devient alors [10]:

$$P(x) = 1 - \exp\left[-\left(\frac{x}{x_0}\right)^{\alpha}\right]$$
(III.3)

ou sa forme linéaire :

$$\log \ln \frac{1}{1 - P(x)} = \alpha \log x - \alpha \log x_0 \tag{III.4}$$

Si le phénomène observé suit le modèle de Weibull à 2 paramètres, le graphique où l'on porte en abscisses $\log x$ et $\log \ln \frac{1}{1 - P(x)}$ en ordonnées doit être une droite de pente α .

6.3. Modèle à trois paramètres

Si la courbe correspondante à l'expression (III.1) n'est pas linéaire mais se traduit par une expression polynomiale, il faut avoir recours à la relation complète [31].

$$P(x) = 1 - \exp\left[-\frac{(x - x_s)^{\alpha}}{(x_0 - x_s)^{\alpha}}\right] \qquad x > 0 \qquad (\text{III.5})$$

La relation linéaire est de la forme :

$$\log \ln \frac{1}{1 - P(x)} = \alpha \log(x - x_s) - \alpha \log(x_0 - x_s)$$
(III.6)
P(x < x_s) = 0

La grandeur x_s apparait donc une valeur seuil au dessous de laquelle le phénomène régit par la variable x ne se produit pas, c'est à dire dans notre cas la probabilité de claquage est nulle.

6.4. Signification des paramètres

a. Paramètre de forme

L'expression linéaire (III.4) donne au paramètre α une signification majeure. C'est la pente de la caractéristique du modèle de Weibull dans sa représentation linéaire. Il est, par conséquent, l'image de la dispersion de la variable aléatoire [36].

- > Si α est inférieur à 1, la probabilité de claquage diminue avec le temps, ceci correspond à une "mortalité infantile" des échantillons.
- > Si $\alpha = 1$, la loi Weibull équivaut à une loi exponentielle, et la probabilité de claquage est indépendante du temps d'application de la tension.
- Si α >1, la probabilité de claquage augmente avec le temps, ce qui correspond à un vieillissement normal, c'est-à-dire à une fatigue initialement nulle et qui s'accentue avec le temps.

b. Paramètre d'échelle

Le paramètre d'échelle ou de position x_0 est destiné à définir une valeur centrale de la caractéristique de la population étudiée.

$$P(x) = 1 - \exp\left[-K\left(\frac{x}{x_0}\right)^{\alpha}\right]$$
(III.7)

La valeur de x_0 correspond au maximum de densité de probabilité de la distribution :

$$f(x) = \frac{dP(x)}{dx}$$
(III.8)

En posant dans l'expression (III. 7) :

$$x_0' = K^{1/\alpha} \cdot x_0$$

On obtient :

et

$$P(x) = 1 - \exp\left[-\frac{x^{\alpha}}{x_0^{\alpha}}\right]$$
(III.9)

$$f(x) = \frac{dP(x)}{dx} = \frac{\alpha x^{(\alpha-1)}}{x_0^{\alpha}} \exp\left[-\frac{x^{\alpha}}{x_0^{\alpha}}\right]$$
(III.10)

Pour trouver le maximum de f(x), on annule sa dérivée, d'où l'équation :

$$\frac{df(x)}{dx} = 0 \tag{III.8}$$

$$\left[\left(\frac{\alpha(\alpha-1)x^{(\alpha-2)}}{x_0^{\alpha}}\right) - \left(\frac{\alpha x^{(\alpha-1)}}{x_0^{\alpha}}\right)^2\right] \exp\left[-\frac{x^{\alpha}}{x_0^{\alpha}}\right] = 0$$

Soit :

$$\frac{\alpha(\alpha-1)x^{(\alpha-2)}}{x_0^{\alpha}} = \left(\frac{\alpha x^{(\alpha-1)}}{x_0^{\alpha}}\right)^2$$

$$\alpha(\alpha-1)\cdot x^{(\alpha-2)} = \frac{\alpha^2 x^{(2\alpha-2)}}{x_0^{\alpha}}$$

Après transformation :

$$\frac{x}{x_0} = \left[\frac{\alpha - 1}{\alpha}\right]^{1/\alpha}$$

Si α tend vers + ∞ la limite $\left(\frac{x}{x_0}\right) = 1$

On peut donc considérer que x_0 correspond à la valeur maximum de la densité de probabilité. On prend l'expression (III.4) :

$$\log \ln \frac{1}{1 - P(x)} = \alpha \log x - \alpha \log x_0$$

Pour $x = x_0$, on a :

$$\log \ln \frac{1}{1-P} = 0 \implies P = 1 - \frac{1}{e} = 63,2\%$$
 (III.10)

Dans le contexte expérimental, ces paramètres ont la signification suivante :

 Pour des essais sous champ constant, x =t₀ est valeur nominale du temps de rupture. Pour des essais sous rampe de tension, x₀=E₀ est valeur nominale du champ de rupture.

Dans les deux cas t_0 et E_0 sont caractérisés par une probabilité de rupture de 63,2% correspondant à une densité maximum.

c. Paramètres de localisation

Introduire un paramètre de localisation consiste tout simplement à transiter les courbes de probabilité cumulée selon l'axe des abscisses. La formule de Weibull devient [31]:

$$P(x) = 1 - \exp\left[-\left(\frac{x - x_s}{x_0 - x_s}\right)^{\alpha}\right] \qquad x > x_0$$
(III.11)

Mathématiquement, x_s relève un risque de défaillance nul pour des valeurs de x comprises entre 0 et x_s . La grandeur x_0 apparaît dés lors comme une valeur seuil en dessous de laquelle le phénomène régi par la variable x ne peut pas se produire.

7. Application du modèle de Weibull à la rupture des isolants solides

L'application du modèle statistique de Weibull à la caractérisation des isolants solides repose sur les hypothèses suivantes [31] :

- On considère que le phénomène de claquage est caractérisé par une variable aléatoire à deux dimensions le temps t au bout duquel se produit la rupture de l'isolant et le gradient du potentiel qui a provoqué cette rupture.
- Le claquage est localisé dans un petit volume de l'isolant sur toute l'épaisseur.

La probabilité cumulée prend la forme suivante [30]:

$$P(E,t) = 1 - \exp(1 - CE_b t_a)$$
 (III.12)

avec :

C : Constante dépendant de la géométrie de l'échantillon.

E : Champ électrique appliqué qui représente la contrainte.

a et b : Exposants caractéristiques.

t : Temps au bout duquel se produit le claquage.

La relation (III.12) peut se mettre sous la forme suivante [30]:

$$P(E;t,v) = 1 - \exp\left[\left(\frac{E}{E_0}\right)^b \left(\frac{t}{t_0}\right)^a \left(\frac{v}{v_0}\right)\right]$$
(III .13)

avec :

 E_0' , t_0' , v_0' sont les facteurs d'échelle respectivement à la contrainte E, à la durée t et au volume v de l'isolant étudié.

En posant P(E,t) = p et en faisant les transformations nécessaires, donc l'équation (III.13) s'écrit comme suit :

$$\log \ln \frac{1}{1-p} = b \log E + a \log t + k$$
 (III.14)

En appliquant des contraintes d'amplitudes différents, mais pendant des durées égales à $\log t$ donne avec k['] une nouvelle constante, k'' telle que ($a \log t + k^{'} = k^{''}$)

L'équation (III.14) s'écrit comme suit :

$$\log \ln \frac{1}{1-p} = b \log E + k^{"}$$
 (III.15)

Dans le cas où le champ électrique est constant, l'équation (III.14) prend la forme suivante :

$$\log \ln \frac{1}{1-p} = a \log t + k^{"}$$
(III.16)

avec : $k^{'''} = b \log E + k'$

En retranchant membre à membre entre (III.15) et (III.16) on aura :

$$\log E = \frac{a}{b}\log t + \left(\frac{k^{"'} - k^{"}}{b}\right)$$
(III.17)

En posant :
$$\frac{a}{b} = \frac{1}{n}$$
 on aura :
 $\log E = \frac{1}{n(\log t) - 1} + A$ (III.18)

L'équation de la droite de durée de vie en coordonnées bi-logarithmiques qui traduit la relation bien connue $G^{''}t = k$ dite de type puissance inverse, est aussi appelée caractéristique d'endurance électrique [31]. Le signe (-) de la relation (III.18) provient du fait que n est toujours positif, mais la pente $\frac{1}{n}$ des droites de durée de vie est négative.

8. Diagramme de Weibull

Théoriquement, il n'existe pas de méthodes précises d'estimation du paramètre d'échelle ($x_0 = E_0$) et du paramètre de forme de la distribution de Weibull [18]. Cependant, il existe certaines méthodes empiriques qui consistent à classer les tensions par ordre croissant. En désignant par N le nombre d'échantillons testés et par i le rang de la valeur de claquage, la probabilité de rupture est donnée par [35] :

• Lorsque N est suffisamment grand :

$$P(i,N) = \frac{i}{N+1}$$
(III.19)

Lorsque N est faible de l'ordre de la dizaine ou moins :

$$P(i,N) = \left[\frac{0.69}{N} + (i-1)\left(\frac{1.38}{N(N-1)}\right)\right]$$
(III.20)

Conclusion

Cette partie est réservée à une étude bibliographique qui nous a permis de connaître certains résultats exposés dans divers travaux liés à l'étude des polymères.

Nous avons remarqué que beaucoup de travaux ont été faits à l'égard des polymères et cela dans divers domaines et beaucoup d'applications. Les chercheurs ont étudié ces matériaux d'un point de vue constitutive et comportement chimique, mécanique, électrique...etc afin d'apporter un éclaircissement pour une éventuelle utilisation optimale.



Cette partie est consacrée à l'étude expérimentale où l'on s'intéresse à l'étude de la rigidité diélectrique du polyméthacrylate de méthyle soumis à un vieillissement thermique. Les essais consistent, d'abord, à soumettre une population d'échantillons du matériau à un vieillissement thermique. Ensuite ces échantillons ont subi des essais de claquage sous une rampe de tension alternative de fréquence 50 Hz.

1. Echantillons

Les éprouvettes du PMMA (plexiglas), utilisées dans les essais, ont été découpées en carrés de 7,5 cm \times 7,5 cm à partir de deux plaques de dimensions de 2 m \times 1,4 m et d'environ 2 mm d'épaisseur (Figure V.1).



Figure V.1: Eprouvette de PMMA.

2. Dispositifs expérimentaux

2.1. Dispositif de vieillissement des éprouvettes

Après avoir découpé et nettoyé les échantillons, ces derniers ont été soumis à un vieillissement thermique dans une étuve à air ventilée (figure V.2), à la température de 100°C. Des prélèvements d'échantillons ont été effectués après un temps donné avec une semaine d'intervalles.



Figure V.2: Etuve de vieillissement thermique.

2.2. Mesure de la rigidité diélectrique

Pour la mesure de la tension de claquage nous avons utilisé un dispositif comprenant les éléments suivants (Figure V.3):

- > Un générateur de tension SG1 (Figure V.4).
- > Un transformateur HT pouvant délivrer une tension allant de 0 à 100 kV pour des essais en alternatif (Figure V.5).
- > Une résistance de protection R = 106 k Ω limitant le courant
- > Un diviseur de tension capacitif ($C_0 = 0,1$ nF et $C_u = 41,4$ nF).
- Un voltmètre de crête (U_{cr}) AC/DC de type MU11, à affichage digital permettant la mesure, selon le montage électrique, des hautes tensions alternatives ou continues (Figure V.6).
- Un système d'électrodes planes en cuivre ayant un diamètre de contact plan avec l'isolant de 2 cm (Figure V.7)



Figure V.3: Schéma de l'installation d'essai utilisée.

- 1. Alimentation basse tension.
- 2. Transformateur T 100.
- 3. Nœud de liaison de forme sphérique.
- 4. Résistance d'amortissement R_a.
- 5. Capacité haute tension $C_0 = 0,1 \text{ nF}$
- 6. Support d'élément.
- 7. Boite de connexion.

- 8. Câble coaxial.
- 9. Voltmètre de crête MU11.
- 10. Partie de mesure basse tension AC.
- 11. Partie de mesure basse tension DC.
- 12. Electrode mise sous haute tension.
- 13. Electrode mise à la terre.
- 14. Grille de protection.



Figure V.4: Générateur basse tension SG1.





Figure V.5 : Transformateur d'essai T 100.



Figure V.6: Voltmètre de crête MU11.



Figure V.7 : Ensemble système d'électrodes avec cellule de mesure.

2.3. Dispositif de mesure des épaisseurs

Pour mesurer l'épaisseur des échantillons nous avons utilisé un palmer de type TGL15048/I présenté à la figure V.8. La précision de l'appareil est de 10^{-2} mm.



Figure V.8: Palmer.

3. Déroulement des essais

3.1. Conditionnement des échantillons

Avant les essais, les éprouvettes ont été nettoyées puis conditionnées pendant au moins 24 h dans un dessiccateur (figure V.9) contenant du gel de silicone conformément aux recommandations de la norme DIN 53.481/VDE 03035 [37].



Figure V.9: Dessiccateur avec échantillons au cours de conditionnement.

3.2. Essais de rigidité diélectrique

Les essais consistent à placer l'éprouvette de PMMA entre deux électrodes et à lui appliquer une rampe de tension de 2,2 kV/s jusqu'au claquage. L'ensemble a été immergé dans une huile minérale (BORAK 22) afin d'éviter les contournements. Comme il a été dit que la rupture est un phénomène aléatoire, il s'avère indispensable de soumettre une population importante d'échantillons au vieillissement thermique pour chaque temps d'exposition à la chaleur. Dans notre cas, ce lot est de 50 échantillons.

Après le conditionnement, l'éprouvette est retirée du dessiccateur pour être insérée entre les deux électrodes (Figure V.9). L'écrou a été serré sur la tige mobile qui exerce une pression sur l'éprouvette assurant un contact parfait électrode-isolant. Ensuite la porte de la grille de protection a été fermée. Puis l'appareil de commande SG1 a été mis en service après l'avoir mis sous mode automatique et avoir fixé la vitesse de montée de la rampe.

Des phénomènes acoustiques et lumineux ont été constatés avec l'augmentation de la tension appliquée. Au départ, nous avons observé des décharges superficielles qui éclairent le milieu, puis des crépitements suivis de bruits d'abeilles et enfin un bruit sourd caractérisant le claquage. La valeur de la tension de claquage est affichée et mémorisée pendant 5 secondes par le voltmètre de crête.

Après rupture nous retirons l'échantillon de la cellule et nous repérons le point noir (Figure V.7), dû à la carbonisation du matériau caractérisant le lieu du claquage. S'il n'y a pas de trace de claquage sur l'échantillon, c'est qu'il y a eu contournement. Dans ce cas, il est nécessaire de remuer l'huile pour dissiper les particules de carbonisation entreposées aux alentours des électrodes. Si plusieurs contournements successifs ont eu lieu, c'est qu'il y a suffisamment de particules de carbone accumulées dans l'huile formant un canal conducteur favorisant le contournement. Pour remédier à ce problème, nous changeons l'huile isolante.



Figure V.10: Eprouvette perforée.

La mesure de l'épaisseur a été effectuée en trois points aux alentours du canal de perforation avec le palmer présenté à la figure V.8. L'épaisseur retenue a été calculée comme la moyenne arithmétique des trois mesures. Cette opération a été réalisée pour toutes les éprouvettes testées de différents temps de vieillissement. Les valeurs de la rigidité diélectrique ont été analysées statistiquement en utilisant le modèle de Weibull.

4. Résultats et discussion

4.1. Analyse statistique

La rigidité diélectrique est donnée par la formule suivante:

$$E = \frac{U}{d} \tag{V.1}$$

avec:

U : Tension de claquage (kV).

d : Épaisseur de l'échantillon (mm).

La probabilité de rupture a été calculée en utilisant la relation suivante [31]:

$$P(i,N) = \frac{i}{N+1} \tag{V.2}$$

avec:

i : Rang de la valeur de la rigidité après un classement par ordre croissant.

N : Nombre d'échantillons testés, dans notre cas N = 50.

Les diagrammes de Weibull à 2 paramètres donnant $LogLn\left(\frac{1}{1-P}\right)$ en fonction de LogV

sont présentés dans les figures V.11 – V.14 pour les différents temps de vieillissement. Le lissage des points expérimentaux a été effectué en utilisant une méthode numérique. Le tracé des diagrammes conduit à un polynôme du deuxième ou du troisième degré (selon le coefficient de corrélation). Dans ce cas, la recherche de la valeur nominale de la rupture est justifiée statistiquement.



Figure V.11 : Diagramme de Weibull à 2 paramètres de la rigidité diélectrique pour un vieillissement de 1848 h.



Figure V.12 : Diagramme de Weibull à 2 paramètres de la rigidité diélectrique pour un vieillissement de 2016 h.



Figure V.13 : Diagramme de Weibull à 2 paramètres de la rigidité diélectrique pour un vieillissement de 2184 h.



Figure V.14 : Diagramme de Weibull à 2 paramètres de la rigidité diélectrique pour un vieillissement de 2352 h.

Tableau représentatif de la relation E = f(t).

Temps de				
Vieillissement	1848	2016	2184	2352
(heures)				
Rigidité				
diélectrique	33,88	31,97	33,11	32,16
nominale (KV/mm)				

4.2. Variation de la rigidité diélectrique en fonction du temps de vieillissement

En exploitant les valeurs nominales du champ de rupture obtenu d'après les distributions de Weibull, nous avons représenté la courbe donnant la variation de la rigidité diélectrique en fonction du temps de vieillissement (figure V.15).



Figure V.15: Variation de la rigidité diélectrique en fonction du temps de vieillissement.



Conclusion

Notre travail est consacré à l'étude du vieillissement thermique et son influence sur la rigidité diélectrique des isolants solides.

Nous avons considéré la loi statistique de Weibull à 2 paramètres afin d'estimer le paramètre E_0 .

L'étude montre que les diagrammes de Weibull à 2 paramètres correspondant aux différents temps de vieillissement conduisent à des polynômes du deuxième ou du troisième degré (selon le coefficient de corrélation) et l'existence du seuil de rupture est probable. Le lissage des points expérimentaux a été fait en utilisant une méthode numérique. Dans ce cas la recherche de la valeur nominale de rupture est justifiée statistiquement.



Bibliographie

[1] Jeane Vene ["]Les plastiques["], Que sais-je ?, Paris : presses universitaires France, 1973.

[2] Alain Boudet, ["]Voyage au cœur de la matière plastique["], Les microstructures des polymères, CNRS édition, Paris, 2003.

[3] Traité des matériaux, ["]Matériaux polymères["] : propriétés mécaniques et physiques. Vol14, Lausane : presses polytechniques et universitaires Romande, 2001.

[4] F. Pardos, Technique de l'Ingénieur, "traité des plastiques et composites", D3555, édition Michel chatain, 1996.

[5] M. Fantanille. Yves. Gnanoo, ["]Chimie et physico-chimie des polymères["], édition Dunod, Paris, 2002.

[6] M. Carrega, M. Biron, C. Duval, J-F. Agassant, O. Denizart, ["]Matériaux polymères["], édition Dunod, avril 2007.

[7] Robert. Perrin, Jeane. Pierre. Scharef, ["]Chimie industrielle["], 2^{eme} édition Dunod, Paris, 1999.

[8] J. P. Trotignon. J. Verdu. A. Dobraczynski. M. Piperaud, ["] Précis, Matières plastiques["], structures-propriétés, mise en œuvre, normalisation, édition Nathan, 2006.

[9] N. Azzi, M. Bouksil, ["]Etude de vieillissement thermique du PMMA["], Mémoire d'ingénieur, Tizi-Ouzou, 2008.

[10] Commission Electrotechnique internationale comité d'étude n⁰63, "système d'isolation", Evaluation de l'endurance électrique des systèmes isolation électrique, procédure d'évaluation basée sur des distributions de valeurs extrêmes, 1989.

[11] B. Fallou : "Caractéristiques des isolants solides, méthodes de mesure, valeurs et significations" Techniques de l'Ingénieur, D 214 et D215, 1970.

69

[12] B. Fallou : "comportement spécifiques des matériaux isolants soumis à diverses contraintes (chaleur, champ électrique, radiation) " RGE N ° 10, octobre 1985, pp.756-767.

[13] E. Moriane : "L'endurance thermique des isolants et systèmes d'isolation. Incidence dans la construction des matériels, indice de température, contrôle du vieillissement thermique de différents matériaux isolants", RGE N ° 7/8, juillet-aout 1975, pp. 452-466.

[14] P. Belloc, B. Fallou: "Etude du vieillissement thermique des matériaux utilisés dans la construction électrique" RGE N° 1, janvier 1970, pp.243-246.

[15] CEI 216-1 : "Méthodes générales pour la détermination des propriétés d'endurance thermique, des indices de températures et des profils d'endurance thermique", édition 1974.

[16] Z .Szczepanski, " Uktady izolacyjne urzadzen elektroenergetyczne", praca zbiorowa,W.N.T, Varsovie, 1978.

[17] C. Stevens, "Méthodes complémentaires aux essais d'endurance thermiques des matériaux isolants", CIGRE, rapport N ° 3 groupe 15, 1982.

[18] L. Deschamps, C. Caillot, M. Paris et J. Perret, "L'utilisation des matériaux synthétiques pour l'isolation des câbles haute tension et très haute tension", R.G.E, N°5, pp.343-360, Mai 1983.

[19] J. Carlier : "L'endurance thermique des isolants et systèmes d'isolation. Incidence dans la construction des matériels. Classification thermique des systèmes d'isolation des machines électriques de grande puissance", RGE N° 7/8, Juillet-Aout 1974, pp.467-469.

[20] J. Verdu : " Comportement à long terme" Techniques de l'ingénieur, A 3150, A 9 I, 1980.

[21] S. HIRABAYASHI, "Comportement sous contraintes multiples de matériaux isolants et systèmes d'isolation", CIGRE, rapport n⁰ 3, groupe 15, 1984.

[22] C. Menguy, "Mesure des caractéristiques des matériaux isolants solides", Techniques de l'ingénieur, Traité de Génie électrique, D2 310, 2005.

70

[23] H. Boyer, M. Norbart, R. Philippe, "Construction du matériel électrique", Mitsui & CO- LTD. Tokyo, Japan, 1991.

[24] M. Labrosse, "Plastiques, Essais normalisés", Techniques de l'ingénieur, AM4 A3530, 1997.

[25] R. Cœlho, B. Aladenize, "Les diélectriques", Editions Hermès, Traité des Nouvelles Technologies, Séries matériaux, 1996.

[26] J. C. Anderson, "Diélectriques". Edition Dunod, Paris, 1996.

[27] M. Aguet et M. Lanauvici, "Traité d'électricité". EPFL, Vol XXII, Haute tension, Editions Géorgie, Ch-Saint-Saphorin, 1982.

[28] N. Rouha, A. Medjoub, Y. Zefouni et N. Youdjou, "Etude de la corrélation entre tension seuil d'apparition des décharges partielles et d'évolution des arborescences électriques", COMAEI 98, Bejaia, Décembre 1998.

[29] M .A. Handala, "Contribution à l'étude de propagation des arborescences électriques dans L' EPDM". Thèse Magister. ENP Alger 1982.

[30] C. Laurent, "Rupture diélectrique dans les polymères", R.G.E, N°10, pp. 745, 755, octobre 1985.

[31] C. Chauvet, "Mise au point d'une méthodologie sur des essais de rupture à court terme en vue de la caractérisation des câbles H.T", Thèse de doctorat, Toulouse 1992.

[32] I. Bazovski, "Fiabilité, théorie et pratique de la sûreté de fonctionnement", Edition Dunod, 1996.

[33] M. Nedjar, "Evaluation de la tenue diélectrique à court et à long termes des polymères utilisés dans les dispositifs haute tension", Thèse de doctorat d'Etat des sciences physiques, TIZI-OUZOU, 2003.

[34] W. Weibull, "A statistical distribution function of wide applicability", Journal of Applied Mechanics, Vol.18, pp.293-297, 1951.

[35] A. Darhouani, "Caractérisation de la tenue diélectrique des polyéthylènes sous champ alternatif à 50Hz", Thèse de Doctorat 3^{ème} cycle, Université Paul Sabatier, Toulouse 1985.

[36] N. Khalèche, A. Boubakeur, A. Ouabdessalam et C. Laurent, "Application de la loi de Weibull aux phénomènes de vieillissement et à l'évolution de la durée de vie du polychlorure de vinyle", 2^{eme}CEA 94, Alger, Novembre 1994.

[37] DIN53481/VDE303, "Specification for electrical tests of insulating materials, breakdown voltage, electric strength", 02 November 1974.

[38] M. Nedjar, "Evaluation de la tenue diélectrique à court et à long termes des polymères utilisés dans les dispositifs haute tension", thèse de doctorat d'état ès sciences des physiques, Tizi-Ouzou, 2003.
