

Caractérisation et modélisation du comportement diélectrique d'un matériau composite soumis à un vieillissement hydrothermique

Thinh Pham Hong

► To cite this version:

Thinh Pham Hong. Caractérisation et modélisation du comportement diélectrique d'un matériau composite soumis à un vieillissement hydrothermique. Autre. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2005. Français. NNT: . tel-00011163

HAL Id: tel-00011163 https://theses.hal.science/tel-00011163

Submitted on 7 Dec 2005 $\,$

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THESE

Pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université Joseph Fourier Spécialité : Génie Electrique

présentée et soutenue publiquement le 21 novembre 2005 par

PHAM HONG Thinh

Caractérisation et modélisation du comportement diélectrique d'un matériau composite soumis à un vieillissement hydrothermique

Directeurs de Thèse :

Olivier LESAINT & Patrice GONON

Composition du jury

M. T. LEBEY	Rapporteur
M. A. TOUREILLE	Rapporteur
M. J. N. FOULC	Examinateur
M.O. LESAINT	Examinateur
M. P. GONON	Examinateur
M. H. DEBRUYNE	Examinateur

Thèse préparée au sein du Laboratoire d'Electrostatique et de Matériaux Diélectriques- CNRS/UJF

A mes parents, à mes frères

Remerciements

Ce travail s'est déroulé au sein du Laboratoire d'Electrostatique et de Matériaux Diélectriques (LEMD) du Centre National de Recherche Scientifique (CNRS) de Grenoble. Le support financier a été assuré par le Ministère Français de l'Education Nationale, de la Recherche et de la Technologie (MENRT). Les équipements et les échantillons ont été fournis grâce à l'aide de la société Electricité de France (EDF), R&D.

J'exprime ma profonde gratitude à Monsieur Olivier Lesaint, Directeur de Recherche au CNRS et Directeur actuel du LEMD, pour le choix du sujet et pour avoir dirigé avec beaucoup de dévouement ce travail. Ses qualités scientifiques et techniques m'ont permis de mener à bien cette étude. Qu'il me soit permis de lui exprimer mes plus sincères reconnaissances pour la bienveillance qu'il n'a cessé de manifester à mon regard.

Mes vifs remerciements s'adressent aussi à Monsieur Patrice Gonon, Maître de Conférence à l'Université Joseph Fourier (UJF), qui a suivi ce travail en me prodiguant conseils et encouragements tout au long de sa réalisation. Je tiens à lui exprimer ma plus profonde gratitude.

Je tiens à remercier vivement Monsieur Thierry Lebey, Directeur de recherche au Laboratoire de Génie Electrique de Toulouse (LGET) pour l'intérêt qu'il a bien voulu porter à ce travail en acceptant d'être rapporteur de cette thèse.

Je remercie très sincèrement Monsieur Alain Toureille, Professeur à l'Université Sciences et Techniques du Languedoc, Laboratoire d'Electrotechnique de Montpellier (LEM), qui a aimablement accepté de juger ce travail en tant que rapporteur.

Je tiens à remercier très sincèrement Monsieur Jean-Numa Foulc, Professeur de l'Université Joseph Fourier pour l'honneur qu'il me fait en acceptant de présider le jury d'examen.

Que Monsieur Hervé Debruyne, Docteur- ingénieur au sein de la société Electricité de France R&D, trouve ici l'expression de ma sincère reconnaissance pour avoir consacré de son temps et de ses compétences, en tant qu'examinateur, à juger minutieusement ce mémoire et participer au jury.

Je suis redevable à Monsieur André Petit, Ingénieur à la Division Technique Général (DTG)-EDF à Grenoble pour m'avoir donné la possibilité d'effectuer des mesures sur les barres réelles dans son laboratoire, et aussi pour les échantillons et les documents relatifs au matériau qu'il m'a fourni. *C'est avec reconnaissance que je remercie Monsieur André Denat, précédent Directeur du LEMD pour m'avoir accueilli et permis de réaliser cette thèse dans son laboratoire.*

Un grand merci à Monsieur Lucien Saragossi, Assistant Ingénieur, qui a assuré l'essentiel de la fabrication des cellules d'essais, et dont sa disponibilité et le savoir-faire ont été des aides précieuses lors des mises en forme des échantillons.

J'adresse mes très sincères remerciements à Monsieur Pascal Rain, Maître de Conférence à l'UJF pour son explication lors de l'utilisation de la cellule de mesure du courant, pour la confiance qu'il m'a accordée pour l'enseignement que j'ai effectué à l'IUT.

Mesdames Claire Roux, Geneviève Teissèdre, Messieurs François Montanvert, Christophe Pollet, Jean-Luc Palenzuela, Alain Sylvestre, Jean-Louis Augé et Bernard Malraison, doivent également être remerciés pour leurs précieux conseils, les nombreux services ainsi que la correction de français qu'ils m'ont rendus.

Je tiens à remercier également l'ensemble des personnels et doctorants du LEMD, toute « l'équipe vietnamien » au LEMD : Nguyen Duc Hoang, Do Minh Tuan, Tran Duy Chau, et tous mes amis vietnamiens de Grenoble, qui ont partagé avec moi des moments conviviaux et inoubliables.

Enfin, merci en tout particulièrement à Huong ma compagne de m'avoir supporté et bichonné durant toute cette période.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION GENERALE	4
CHAPITRE I : MATERIAUX COMPOSITES UTILISES POUR L'ISO STATORIQUE ET POSITION DU PROBLEME	LATION 7
I.1. Systèmes d'isolation utilisés pour les barres d'alternateur	9
I.1.1. Batiste verni	9
I.1.2. Micafolium verni	9
I.1.3. Mica enrobé d'Asphalte	9
I.1.4. Mica enrobé de polyester	9
I.1.5. Mica enrobé de résine époxyde [VPI]	9
I.1.6. Mica enrobé de résine époxyde [résine riche]	10
I.1.7. Caoutchouc silicone	10
I.2. Les contraintes appliquées sur l'isolation des barres d'alternateur	10
I.2.1. Contrainte thermique	10
I.2.2. Contrainte électrique	10
I.2.3. Contrainte mécanique	11
I.2.4. Contrainte de charge	11
I.2.5. Contrainte climatique	11
I.3. Les méthodes de diagnostic de l'isolation pour les alternateurs	11
I.3.1. Le diagnostic hors service «Off-line »	
I.3.1.1. Diagnostic par des paramètres non-électriques	
I.3.1.2. Diagnostic basé sur l'histoire de fonctionnement	
I.3.1.3. Mesures de « return voltage »	
I.3.1.4. Mesure de la résistance d'isolation	
I.3.1.5. Indice de polarisation	
1.3.1.6. Test de la rampe de tension continue	
1.3.1.7. Tip-up du facteur de dissipation	
1.3.1.8. Mesure de décharges partielles	
1.3.2. Le diagnostic en service « On-line »	
1.3.2.1. Les mesures de décharges partielles	
1.3.2.2. Les autres méthodes « On-line »	
1.4. Présentation du matériau étudié	
1.4.1. Le mica	
1.4.2. Lissu de verre	
1.4.3. La resine polyepoxyde	
1.4.4. Adnesion resine - renfort	
1.5. La problematique	
References bibliographiques	1/
CHAPITRE II: ETUDE DE LA DIFFUSION D'EAU	21
II.1. Rappels théoriques sur le phénomène de diffusion	
II.1.1. Mécanisme de diffusion	22
II.1.2. Modèle mathématique	23
II.2. Cinétique de prise en eau	27
II.2.1.Procédure de préparation des échantillons	

II.2. 2. Effet de la température	
II.2. 3. Effet de l'épaisseur	
II.2.4. Comportement du matériau aux temps très longs	
II.3. Conclusion	
Références bibliographiques	
CHAPITRE III: CARACTERISATION ELECTRIQUE DU VIEILLISSE	MENT
HYDROTHERMIQUE.	
III.1. Mesures de claquage sous champ alternatif	
III.1.1. Préambule	
III.1.2. Cellule de mesure	
III.1.3. Résultats des mesures de claquage	
III.1.3.1. Echantillons secs	
III.1.3.2. Echantillons humides	
III.1.4. Mécanismes possibles de claquage	
III.1.5. Comparaison avec les valeurs publiées et corrélation avec le claquage d'une	e barre .45
III.2. Spectroscopie diélectrique	
III.2.1. Préambule	
III.2.2. Principe de la mesure de spectroscopie diélectrique	
III.2.3. Dispositifs de mesure	
III.2.4. Résultats de mesure	
III.2.4.1. Spectroscopie diélectrique à basse tension	
III.2.4.2. Effets de l'épaisseur	
III.2.4.3. Effets du champ electrique	
III.2.4.4. Effets de l'anisotropie du materiau	
III.2.4.5. Effets de la temperature.	
III.5. Mesure de courants de conduction et de polarisation	
III.3.1. Ficalibule	
III 3.3 Dispositif de mesure	
III 3 4 Résultats et discussion	90
III 3 4 1 Influence de la teneur en eau à court terme	90
III 3 4 2 Application possible à une méthode de diagnostic	93
III 3 4 3 Influence de l'anisotropie	94
III 3 4 4 Etude de courant de polarisation	96
III.3.4.5. Etude de la non-linéarité dans la réponse diélectrique	
III.4. Conclusion	
Références bibliographiques	
CHAPITRE IV. MODELISATION DE LA REPARTITION DU CHAMP	EN
PRESENCE DE LA DIFFUSION D'EAU	104
	105
IV.1. Calcul du profil de concentration d'eau au cours du temps	109
IV 1.1. Diffusion dans la matériau sans dommagas	
IV 1 1 2 Diffusion dans le matériau avec dommages	109
IV 1.2 Calcul à la température de service (60° C)	109
IV 1 2 1 Diffusion dans le matériau sans dommages	110
IV 1.2.2. Diffusion dans le matériau avec dommages	110
IV.2. Evolution des propriétés diélectriques	
IV.2.1. A la température ambiante	
•	

IV.2.2. A la température de service	114
IV.3. Calcul de la distribution du champ	115
IV.3.1. Résultats à la température de service (60°C)	116
IV.3.2. Résultats à la température ambiante	119
IV.3.3. Effet de la fréquence	
IV.3.4. Proposition d'une méthode de diagnostic utilisant une sonde de potentiel	123
IV.3.5. Illustration du danger d'appliquer une haute tension à basse fréquence	124
IV.4.Conclusion	125
Références bibliographiques	126
CONCLUSION GENERALE.	127

Introduction générale

Les matériaux composites à base de résine époxyde renforcée par des fibres de verre et du mica trouvent de nombreuses applications dans les appareils électriques à haute tension, telles que l'isolation des barres d'alternateur de forte puissance (plusieurs centaines de MW). Malgré de bonnes propriétés diélectriques et mécaniques, cette isolation est particulièrement vulnérable au vieillissement hydrothermique. Ce vieillissement peut être une cause de la rupture diélectrique et de la défaillance de l'alternateur. Etant donné que l'alternateur est un élément crucial dans un système de production électrique, la qualité de l'isolation détermine la durée de vie technique et économique de la machine ainsi que la qualité de l'électricité distribuée. Quand une dégradation se produit dans le matériau d'isolation, il faut posséder une bonne méthode de diagnostic pour la détecter et optimiser la maintenance de ces machines.

Actuellement, les mécanismes de vieillissement de ce type du matériau sont étudiés par plusieurs industries et universités. Ces travaux s'intéressent aux modèles de durée de vie et aux méthodes de diagnostic pour différents types de vieillissement. Parmi les méthodes de diagnostic, la spectroscopie diélectrique à basse fréquence a connu un grand succès au cours de ces dernières années car elle est particulièrement efficace avec les matériaux composites vieillis. Cette technique a été utilisée pour détecter le vieillissement électrique et thermique. Peu de travaux se sont intéressés au problème du vieillissement hydrothermique sous haute tension.

Notre travail consistera à étudier le vieillissement hydrothermique de l'isolation statorique utilisant des matériaux composites, et à proposer une méthode de diagnostic pour ce type de vieillissement.

Dans un premier chapitre, nous présentons les matériaux composites utilisés dans l'isolation des alternateurs. Les contraintes qui provoquent le vieillissement de l'isolation et les méthodes de diagnostic existantes sont également présentées afin de positionner le problème.

Le deuxième chapitre présentera la méthode de vieillissement accéléré utilisée dans cette étude pour maîtriser et quantifier la dégradation du matériau. Plusieurs paramètres qui affectent la diffusion de l'eau seront envisagés tels que l'anisotropie et la température. Les mécanismes de diffusion de l'eau qui sont mis en jeu dans le matériau seront également discutés.

L'influence du vieillissement hydrothermique sur les propriétés électriques et diélectriques du matériau sera présentée dans le troisième chapitre. Des mesures de claquage seront effectuées afin d'estimer la dégradation de la tenue de l'isolation. Nous mettrons en évidence l'efficacité des mesures de spectroscopie diélectrique comme un marqueur du vieillissement du matériau. Les mécanismes de vieillissement seront étudiés en combinant des mesures de spectroscopie diélectrique et de courant de conduction. Le phénomène de non-linéarité en fonction de la tension sera également étudié dans ce chapitre.

Le quatrième chapitre exploitera les résultats obtenus dans les deuxième et troisième chapitres pour modéliser le comportement du matériau en service. Nous évaluerons les profils de concentration en eau pour des cas pratiques réels. La distribution du champ dans le matériau vieilli sera calculée grâce à un modèle prenant en compte la dégradation des propriétés diélectriques entraînées par la présence d'eau. Une nouvelle méthode de diagnostic sera également proposée dans ce chapitre.

Chapitre I

Matériaux composites utilisés pour l'isolation

statorique et position du problème

Un matériau composite typique est un système qui est constitué par l'association à l'échelle microscopique de deux ou plusieurs autres matériaux aux caractéristiques complémentaires. Cela permet d'associer un ensemble de propriétés mécaniques ou physiques qu'il serait impossible d'obtenir avec les composants pris de façon isolée. En général, un matériau composite est composé par un renfort qui est enrobé par une matrice. La matrice tient le renfort selon la forme désirée tandis que le renfort améliore les propriétés mécaniques globales de la matrice.

C'est l'industrie aérospatiale qui est à l'origine du développement des composites notamment par le besoin en matériaux possédant des caractéristiques mécaniques élevées mais aussi pour obtenir un poids de plus en plus faible. De nos jours, les matériaux composites ont acquis une position qui ne cesse de s'étendre dans les applications industrielles. Citons par exemples, le génie civil, l'industrie pétrolière, l'industrie électrotechnique... Dans l'industrie électrotechnique, les matériaux composites trouvent de nombreuses applications dans le domaine de l'isolation électrique. Parmi ces composites, la matrice de résine époxyde renforcée par des fibres de verre constitue une classe de matériaux largement utilisée, notamment pour l'isolation haute tension: isolation extérieure [1,2], transformateur [3], barre d'alternateur [3-5]. C'est dans le contexte de cette dernière application que s'insère ce travail (Figure I.1)



Fig I.1: Une barre isolée avec un matériau composite utilisée pour la construction d'une bobine de stator d'un alternateur de puissance [21]

I.1. Systèmes d'isolation utilisés pour les barres d'alternateur [5]

I.1.1. Batiste verni (Varnished Cambric)

Cet isolant comprend généralement des fibres de coton, cellulose, linge et il est classé dans la « Classe A 105°C ». A cause de l'absence de mica, il est utilisé sous la tension de 2300V maximum. Son avantage provient de la résistance à l'absorption d'humidité et d'huile mais sa capacité de transfert de chaleur est faible.

I.1.2. Micafolium verni (Shellac micafolium)

Le Micafolium verni est classé dans le type « Class B 130°C » car il est constitué de fibres de verres, mica, amiante... Dans ce système, des lamelles en mica sont associées par le vernis. A cause de l'évaporation du vernis volatil, ce système contient de grandes cavités qui sont capables de produire des décharges partielles et de réduire le transfert de chaleur.

I.1.3. Mica enrobé d'Asphalte (Asphalt-Bonded Mica tape)

Il est également classé dans le type « Class B 130°C », il est constitué par des lamelles de mica et une matrice d'asphalte. Le matériau peut contenir une quantité limitée de polyester (PET). Le problème souvent rencontré avec ce type d'isolant est la délamination des couches de mica, en particulier à l'extrémité de la barre où il subit la température et la contamination de l'huile.

I.1.4. Mica enrobé de polyester (Polyester bonded mica tape)

Il appartient au « Class B 130°C ». Les constituants principaux sont des lamelles de mica et une matrice de polyester. La technique utilisée pour la fabrication est du type Vacuum Pressure Impregnation (VPI) [6]. Les barres sont imprégnées dans un autoclave contenant la résine de polyester à haute température. La pression est ensuite appliquée afin d'obtenir l'imprégnation voulue.

I.1.5. Mica enrobé de résine époxyde [VPI] (Epoxy bonded mica tape [VPI])

Ce matériau est classé « Class F 155°C » et utilise la résine époxyde comme matrice. Dans ce système le procédé de fabrication est le même que pour le mica enrobé de polyester sauf que la matrice utilisée est une résine époxyde. Comme la résine époxyde a une caractéristique d'adhésion meilleure que la résine polyester, ce type d'isolement a moins de problème de délamination que le mica enrobé de polyester.

I.1.6. Mica enrobé de résine époxyde [résine riche] (Epoxy bonded mica tape [resin rich])

En raison de sa constitution, le mica enrobé de résine époxyde [résine riche] appartient également au « Class F 155°C ». Le procédé de fabrication est un peu différent du mica enrobé de résine époxyde [VPI]. Les barres sont imprégnées avec la résine époxyde qui contient des renforts comme le mica, des fibres de verre.... Ensuite, elles sont cuites à haute température et haute pression pour que la résine époxyde durcisse. Cette élaboration permet d'obtenir un isolant sans aucune cavité et capable de fonctionner avec une endurance diélectrique très élevée.

I.1.7. Caoutchouc silicone

Le caoutchouc silicone se trouve dans le « class H 180°C » qui regroupe des isolants qui contiennent un silicone élastomère chargé en mica, fibres de verre, amiante. Son avantage est de pouvoir travailler à haute température. Pourtant, il est vulnérable mécaniquement et en raison de l'absence de mica, il est strictement utilisé pour des tensions inférieures à 4kV.

I.2. Les contraintes appliquées sur l'isolation des barres

d'alternateur

Le succès des matériaux composites utilisés pour l'isolation des barres d'alternateur provient de plusieurs avantages combinés : bonnes propriétés spécifiques (rapport performance/masse volumique), bonnes propriétés diélectriques intrinsèques, excellentes propriétés mécaniques, faible coût...Pourtant, ces matériaux subissent des dégradations de leurs propriétés diélectriques qui sont entraînées par les contraintes appliquées ou induites dans des conditions de service [7-10]. Les contraintes principales sont citées dans les paragraphes suivants

I.2.1. Contrainte thermique

La température est un des facteurs qui influence le plus le vieillissement du matériau. Elle provient soit du maintien d'un régime permanent à température fixe au sein de la machine, soit des surchauffes ponctuelles associées à des défauts aléatoires. La durée de vie thermique (L) d'un matériau est souvent exprimée par la relation d'Arrhenius L=A*exp(B/T) [5] dans laquelle T est la température et A,B sont des constantes.

I.2.2. Contrainte électrique

Cette contrainte peut générer des décharges partielles internes dans la matrice du matériau, à l'interface matrice/renfort ou à l'interface conducteur/isolant[5,11,12]. Les décharges

s'accompagnent d'une ionisation du gaz causant la détérioration du matériau. Une autre conséquence sévère de la contrainte électrique est l'arborescence électrique qui se propage le long des interfaces matrice/renfort [13,14].

I.2.3. Contrainte mécanique

Durant le fonctionnement de l'alternateur, le stator subit des forces électromécaniques qui entraînent des vibrations conduisant à une érosion suite aux frottements [5]. Les différences de coefficient de dilatation des matériaux peuvent également engendrer des contraintes internes [5,15].

I.2.4. Contrainte de charge

La mode de fonctionnement a une influence importante sur la durée de vie de la machine. Ceci est particulièrement vrai lorsque la machine est soumise à des variations de charges fréquentes. Ceci peut contribuer à la délamination du renfort, et augmenter les décharges partielles localisées à l'interface matrice/renfort [5].

I.2.5. Contrainte climatique

Certaines machines peuvent fonctionner dans un environnement atmosphérique pollué par de l'humidité, de l'huile ou des poussières. L'humidité contenue dans l'atmosphère peut agir comme un plastifiant pour la délamination du renfort dans les matériaux composites [15]. Un autre problème est la combinaison de l'huile et des poussières qui peut bloquer les canalisations de ventilation et provoquer également des surchauffes dans l'isolation [15].

I.3. Les méthodes de diagnostic de l'isolation pour les alternateurs

L'action combinée des différentes contraintes énoncées ci-dessus sur l'isolation conduit à un vieillissement qui se traduit par une dégradation lente et progressive des propriétés électriques isolantes et qui est une des causes prédominantes de défaillance de la machine [16]. Le diagnostic du vieillissement de l'isolation est donc indispensable pour contrôler l'état de l'isolation afin de prévoir les maintenances nécessaires pour limiter les dommages entraînés par une défaillance de la machine [5, 15, 17-19], la définition du mot « diagnostic » se limitant ici à des mesures non-destructives. Il existe plusieurs méthodes de diagnostic des machines, chacune reflète un aspect de l'isolation vieillie ou ne fonctionne qu'avec un seul type d'isolation. Leur classement est fait selon de multiples critères : électrique ou non-électrique, destructive ou non-destructive, temps ou fréquence, on-line ou off-line... Dans la suite, nous les classons en deux catégories suivant qu'ils sont effectués pendant (On-line) ou hors fonctionnement (Off-line).

I.3.1. Le diagnostic hors service «Off-line »

I.3.1.1. Diagnostic par des paramètres non-électriques [5, 15, 17]

Il s'agit d'une méthode acoustique pour détecter les cavités et les délaminations à l'interface matrice/renfort. On estime également l'état de l'isolant en observant le changement de sa couleur.

I.3.1.2. Diagnostic basé sur l'histoire de fonctionnement [15]

Le nombre d'heures de fonctionnement est considéré comme l'indice standard du vieillissement de la machine. La fréquence de cycles marche/arrêt et les variations de charges fréquentes accélèrent également le vieillissement.

I.3.1.3. Mesures de « return voltage » [20, 21]

L'isolation de l'alternateur est soumise à une tension continue, ensuite l'isolation est court-circuitée pendant un certain temps et le circuit est ouvert à nouveau pour mesurer le « return voltage ». Cette méthode simple sert à savoir si la résistance d'isolation et la constante de temps changent avec le vieillissement.

I.3.1.4. Mesure de la résistance d'isolation [5, 17, 22]

Cette méthode consiste à appliquer une tension continue négative sur l'isolation pendant une minute et à mesurer la résistance. C'est une méthode simple et peu coûteuse et elle est fréquemment utilisée. Cependant, une dégradation locale de l'isolation est difficile à détecter par cette méthode.

I.3.1.5. Indice de polarisation [17, 22]

Un indicateur utile pour détecter une isolation contaminée ou humide est le rapport des courants mesurés à 1 minute et à 10 minutes après application d'une tension continue. Ce rapport est supérieur à 2 pour une isolation sèche et propre tandis qu'il approche l'unité si l'isolation est humide et contaminée.

I.3.1.6. Test de la rampe de tension continue [5, 17, 22, 28]

La résistance de l'isolation est mesurée en fonction d'une tension continue variant suivant une rampe constante. Cette méthode sert à détecter le craquement, une fissure, l'absorption de l'eau, la séparation des couches de l'isolation apparaissant comme des phénomènes de nonlinéarité lorsqu'on applique une tension.

I.3.1.7. Tip-up du facteur de dissipation [5, 15, 17, 22, 23]

Cette technique mesure le changement du facteur de dissipation ($\Delta tan\delta$) entre basse tension et haute tension. Les décharges partielles à haute tension peuvent provoquer une augmentation de tan δ .

I.3.1.8. Mesure de décharges partielles [12, 17, 19, 21, 26, 27]

Il s'agit de mesurer et d'observer l'évolution de la tension d'initiation des décharges (Discharge Inception Voltage-DIV) et de la tension d'extinction des décharges (Discharge Extinction Voltage-DEV) afin d'estimer l'état de l'isolation. Dans cette méthode, la tension est fournie par une source extérieure lors d'un arrêt temporaire de la machine.

I.3.2. Le diagnostic en service « On-line »

I.3.2.1. Les mesures de décharges partielles [5, 11, 15, 19, 20, 24, 25]

La méthode de mesure des décharges partielles « on-line » est similaire à celle off-line sauf qu'on n'utilise pas de source extérieure. L'avantage de cette méthode est de pouvoir estimer l'état de l'isolation sans arrêter la machine. Mais son interprétation est rendue difficile par le bruit haute fréquence provenant de sources autre que les décharges partielles.

I.3.2.2. Les autres méthodes « on-line » [5]

Sont également utilisées: la mesure de la vibration des barres au cours du fonctionnement, de la température d'isolation par rapport à celle en fonctionnement normal.

I.4. Présentation du matériau étudié

Ce travail s'inscrit dans une étude du matériau d'isolation des barres d'alternateurs de très fortes puissance (jusqu'à 1500MW) présents dans les centrales nucléaires ou thermiques. Les isolants sont du type « mica enrobé de résine époxyde », et fonctionnent dans une atmosphère d'hydrogène sec sous pression. Les bobines des barres statoriques sont fabriquées de la manière suivante : les conducteurs en cuivres sont assemblés et ensuite ils sont enrubannés manuellement sur toute la longueur de la barre au moyen d'un ruban composite constitué par deux rubans très minces de tissu de verre préimprégné de résine, entre lesquels est disposé une couche de mica. Chaque barre est ensuite imprégnée dans une autoclave par la méthode VPI. Dans la zone de développante (extrémité courbée de barre), une électrode interne (figure I.1) en matière conductive est utilisée pour améliorer la distribution du champ, dont le but est de limiter l'apparition des décharges partielles [29].

I.4.1. Le mica

Le mica joue le rôle de barrière diélectrique principale du matériau composite [30,31] grâce à son champ de claquage élevé, sa résistance aux décharges partielles, un facteur de perte constant jusqu'à 50MHz, et une stabilité thermique jusqu'à 600°C. Le mica utilisé est obtenu à partir d'un traitement qui, selon le procédé BARDET, le transforme en particules lamellaires

d'une épaisseur de quelques dizaines de micromètres et d'un diamètre de l'ordre du millimètre (figure I. 2).



Figure I.2 : Une feuille de mica visualisée au Microscope Electronique à Balayage(MEB)

I.4.2. Tissu de verre

Souvent employé comme fibre de renforcement grâce à ses propriétés mécaniques excellentes et non sujettes au vieillissement thermique, le verre est le renfort essentiel pour l'industrie des composites à base de résine de synthèse [31,32]. Le verre utilisé pour notre matériau est du verre du type E (silionne) qui présente également de bonnes propriétés électriques : le champ de claquage est élevé (6-10kV/mm) et le facteur de perte est relativement faible (3-5.10⁻³) mais ce dernier augmente rapidement avec l'augmentation de la température à cause de la conduction ionique [32]. La figure I.3 montre une image d'un morceau du tissu de verre prise au MEB où les fibres forment un maillage de 500x1250µm et le diamètre d'une fibre est environ 250µm.



Figure I.3: Le tissu de verre visualisé au MEB

I.4.3. La résine polyépoxyde

Les systèmes époxydes sont des matières plastiques thermodurcissables composées d'un durcisseur et d'une résine. Elles contiennent la fonction époxy :

La résine époxyde dans notre matériau est le DGEBA (DiGlicydil Ether de Bisphénol A) dont la formule chimique est la suivante :

$$CH_{2} - CH - CH_{2} - O = CH_{2} - O - CH_{2} - O - CH_{2} - O - CH_{2} - O = CH$$

Les groupes époxydiques à chaque extrémité de la chaîne et les groupes hydroxyles OH au milieu de la molécule sont responsables de la très grande réactivité des résines époxydes avec les durcisseurs du type anhydride.

Les caractéristiques principales des résines époxydes sont les suivantes [33] :

- Une faible absorption d'eau et un faible retrait qui assurent une exceptionnelle stabilité dimensionnelle
- Les performances mécaniques qui restent très bonnes jusqu'à 100°C
- Des bonnes propriétés diélectriques: le facteur de perte tan δ =2,5.10⁻²; la constante diélectrique ϵ '=4,2; la résistivité ρ =5.10¹⁵ Ω .cm; la rigidité diélectrique U_c≈18-20kV/mm.
- Une forte adhésion sur un grand nombre de matériaux (groupes hydroxyles)
- Une très bonne résistance thermique apportée par les noyaux aromatiques
- Une résistance exceptionnelle aux divers agents chimiques dépendant de l'agent durcisseur choisi

I.4.4. Adhésion résine - renfort

Bien que notre matériau soit constitué par des matériaux avec d'excellentes propriétés diélectriques, cela ne veut pas dire que les performances diélectriques des composites sont aussi excellentes car elles dépendent également de l'adhésion entre le renfort et la matrice [34-36]. Ce phénomène fait intervenir les forces intermoléculaires à l'interface renfort-matrice. Les paramètres qui le gouvernent sont nombreux car ils dépendent aussi bien de la nature, de l'intensité et du nombre de liaisons interfaciales que de la structure des constituants ou des défauts interfaciaux. Ce phénomène est un des points faibles des matériaux composites et il est l'objet de nombreuses recherches [35-38].

I.5. La problématique

Le refroidissement des barres est réalisé par une circulation d'eau dans certains conducteurs creux en cuivre (figure I.4). En cas de fuite, l'isolation sera polluée par l'eau. Etant donné que la molécule d'eau est petite, elle peut pénétrer facilement dans le matériau par diffusion. Une fois que l'eau pénètre dans l'isolation, celle-ci subit une détérioration rapide par des réactions chimiques entre la résine époxyde et l'eau [39]. Si nous tenons compte également des effets accumulés du champ et de la chaleur générée par le courant circulant dans la barre, notre matériau sera vieilli plus rapidement en cours de fonctionnement et l'endurance diélectrique sera fortement réduite [39].



Figure I.4 : Vue en coupe d'une barre d'alternateur de puissance refroidie par l'eau

Des barres claquées sur des machines ont été démontées pour des analyses. Les analyses chimiques (méthode Karl-Fischer) effectuées sur ces barres ont souvent révélé la présence d'eau au voisinage du point claqué. Plusieurs problèmes se posent à partir de ce résultat : quelle est la cinétique de la migration d'eau dans ce matériau, existe t-il un lien entre la présence d'eau et l'apparition du claquage des barres ? Notre étude essayera de répondre à ces questions.

D'autre part, dans l'optique de prédire la durée de vie des machines et d'en effectuer une maintenance conditionnelle, il est indispensable de disposer d'une méthode de diagnostic non destructive capable de fournir des informations sur l'état réel du matériau. La spectroscopie diélectrique peut constituer une technique très intéressante en raison de la sensibilité des propriétés électriques et diélectriques au vieillissement, et de la rapidité de mise en œuvre [21,40].

Dans le but de caractériser l'effet du vieillissement hydrothermique et de comprendre les conséquences pour le matériel, notre étude comprend donc les étapes suivantes :

Etude du matériau :

• Mise au point d'une procédure de vieillissement en laboratoire, et étude de la diffusion d'eau (chapitre II)

• Caractérisation électrique des effets du vieillissement : spectroscopie diélectrique, courants de conduction, tension de claquage (chapitre III)

Conséquence pour l'isolation électrique :

• Modélisation dans une géométrie de barre d'alternateur de la migration d'eau et de ses conséquences sur la répartition du champ (chapitre IV)

Références bibliographiques

[1] Reuben Hackam, « Outdoor HV Composite Polymeric Insulator », IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol.6(5), pp. 651-659, 1999

[2] Janssen H. et al., « Interfacial Phenomena in Composite High Voltage Insulation », IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol.6(5), pp.557-585, 1999

[3] Leijon M. et al., « A recent development in the electrical insulation systems of generators and transformeurs », IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol.17(3), pp.10-15, 2001

[4] Fort E. M., «Rotating Machine Insulation», IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol.25(1), pp.137-140, 1990

[5] McDermid W., « Insulation Systems and Monitoring fo Stator Windings of Large Rotating Machines », IEEE Electrical Insulation Magazine Vol.9(4), pp.7-14, 1993

[6] Richon G. « Vacuum Pressure Impregnations and the resin manufacturer » IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 2(4), 1986

[7] Lewis T. J., «Ageing- A Perspective», IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol.17(4), pp.7-16, 2001

[8] Vijendra K. Agarwal, «Aging of Multistressed Polymeric Insulators», IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol.24(5), pp.741-763, 1989

[9] Agarwal et al., « The Mysteries of Multifactor Ageing », IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol.11(3), pp.37-43, 1995

[10] Mackersie J. W., « Ageing of Composite Machine Insulation with a Non-Linear Response », Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Victoria BC, Canada, pp.756-759, 2000

[11] Audoli A. et Drommi J. L., « Analysis of Partial Discharges Measurments and Generator Technology Evolution » Proceeding of the 3rd International Conference on Properties and Applications of Dielectric Materials, Tokyo, Japan, pp.687-690, 1991

[12] Kutil A. et Fröhlich K., "Partial Discharge Phenomena in Composite Insulation Materials", Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Virginia Beach VA USA, pp.343-346, 1995 [13] Vogelgang R. et al., "Effect of electrical tree propagation on breakdown in mica insulation", 13th International Symposium on High Voltage Engineering, Rotterdam, Netherlands, pp.1-4, 2003

[14] Varlow B. R. et Auckland D.W., "Mechanical Aspect of Electrical Treeing in Solid Insulation", IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol.12(2), pp.21-26, 1996

[15] Ken Kimura, "Progress of Insulation Ageing and Diagnostic of High Voltage Rotating Machine Winding in Japan", IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol.9(3), pp.13-20, 1993

[16] Ward B. E. et al., "A Quality Control Test for High Voltage Stator Insulation", IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol.3(5), pp.12-17, 1993

[17] Gupta B.K. et Culbert I.M., "Assessment of Insulation Condition in Rotating Machine Stators", IEEE Transaction on Energy Conversion, Vol.7(3), pp.500-507, 1992

[18] Toshikatsu Tanaka et al., « Aging and Related Phenomena in Modern Electric Power Systems », IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol.28(5), pp.826-844, 1993

[19] Kim Y.J. et Nelson J.K., «Assessment of Deterioration in Epoxy/Mica Machine Insulation», IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol.27(5), pp.1026-1039,1992

[20] Ildstad E. et al., «Relation between Return Voltage and Other Methods for Measurements of Dielectric Response», IEEE Internationnal Symposium on Electrical Insulation, USA, pp.25-28, 1994

[21] Helgeson Anders, "Analysis of Dielectric Response Measurement Methods and Dielectric Properties of Resin Rich Insulation During Processing", Thèse de Royal Institute of Technology (KTH), Suède, 2000

[22] Vicki Warren et Greg Stone, "Recent Developments in Diagnostic Testing of Stator Winding", IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol.14(5), pp.17-24, 1998

[23] David Train et Lawrence Melia, « A New Power Factor and Power Factor Tip-Up Measurement Technique for Stator Bars and Coils », IEEE Internationnal Symposium on Electrical Insulation, USA, pp.45-49, 1994

[24] Higgins S. A. et Reynders J. P., « Experience with insulation condition monitoring on a 1050 MW Generator », High Voltage Engineering Symposium, London, United Kingdom, pp. 5.352.P5, 1999 [25] Wetzer et al., « Diagnostic and Condition Assessment- Techniques for ConditionBased Maintenance », Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, VictoriaBC, Canada, pp.47-50, 2000

[26] Ziomek W. et Moscicka-Grzesiak W., «Assessment of the State of Mica-Resin Insulation using PD Charge Analysis and Dielectric Loss Measurements», Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, San Francisco, USA, pp.492-495, 1996

[27] Contin A. et al., « Diagnostic of HV Stator Bar Insulation in the Presence of Multi Partial-Discharge Phenomena », Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, San Francisco, USA, pp.488-491, 1996

[28] Lorelynn Rux et William McDermid, « Assessing the Condition of Hydrogenerator Stator Winding Insulation Using the Ramped High Direct Voltage Test Method », IEEE Electrical Insulation Magazine Vol.17(6), pp.27-33, 2001

[29] Emery F.T., « The Application of Conductive and Stress Grading Tapes to VPI High Voltage Stator Coils », IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 12(4), pp. 15-22, 1996

[30] Anton A. et Steinle J-L., « Mica et produit micacé », Technique de l'Ingénieur, vol.D2-360, pp.1-14, 2000

[31] Dieter Kind «High Voltage Insulation Technology», Edition Friedr. Vieweg & Sohn, Braunschweig/Wiesbaden,1985

[32] Daniel Guillon « Fibre de verre de renforcement », Technique de l'Ingénieur, vol.A2 110, pp.1-15, 2000

[33] Bardonnet P., « Résines époxydes : Composants et propriétés », Technique de l'Ingénieur A 3 465, pp.1-16, 2000

[34] Cognard P., « Les applications industrielles des matériaux composites », Edition du moniteur, Tome I, 1989

[35] Steeman P. A. M., « Interfacial Phenomena in Polymers Systems », Thèse de Technische Universiteit Delft, Netherlands, 1992

[36] Park C. H., « A Study of The Dielectric And Mechanical Property Interaction of Glass-Cloth/Epoxy Composites », IEEE Transaction on Electrical Insulation, Vol. 22(4), pp.389-395, 1987

[37] Janssen H. et al., « Interfacial Phenomena in Composite High Voltage Insulation », IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 6(5), pp.651-659,1999

[38] Kadotani K., « Electrical Properties of The Glass/Epoxy Interface », Composites, pp.199-204, 1980

[39] Ito H. et al., « Wet-heat Deterioration and Residual Life Estimation Technology on Water Cooled Stator Coils of Turbine Generator », EPRI, IEEE&CIGRE, Rotating Electric Machinary Colloquium, Lake Buena Vista, Finland, pp.1-5, 1999

[40] Werelius Peter, « Devellopement and Application of High Voltage Dielectric Spetroscopy for Diagnostic of Medium Voltage XLPE Cables », Thèse de Royal Institute of Technology (KTH), Suède, 2001 **Chapitre II**

Etude de la diffusion d'eau

Ce chapitre traite d'une méthode de vieillissement accéléré du matériau sous l'effet hydrothermique pour simuler l'effet d'une fuite d'eau accidentelle dans une barre d'alternateur. Plusieurs paramètres qui influencent l'absorption de l'eau dans le matériau seront envisagés : la température, l'épaisseur et l'anisotropie. Les résultats obtenus sont utilisés pour comprendre les mécanismes de diffusion au sein du matériau, ils sont également indispensables pour étalonner la teneur en eau du matériau en fonction du temps d'imprégnation pour les mesures électriques et diélectriques ultérieures.

II.1. Rappels théoriques sur le phénomène de diffusion

II.1.1. Mécanisme de diffusion

Il existe deux approches [1] différentes concernant la diffusion d'eau dans un matériau composite :

- La première est la théorie du volume libre selon laquelle les molécules d'eau migrent vers les espaces libres du matériau (cavités). Les espaces libres comprennent les espaces entre les macromolécules entremêlées du polymère et les espaces dans les zones interfaciales entre les constituants du matériau. Rappelons que les barres d'alternateur sont imprégnées par la résine. Lors de l'imprégnation, la résine remplit complètement les espaces entre mica et tissu de verre mais lors de la polymérisation, elle se rétracte laissant place à des cavités. Lorsque notre matériau est mis au contact de l'eau, la diffusion d'eau dépendra de la quantité de cavités ainsi que de leurs dimensions. Les molécules d'eau se déplacent d'un site à l'autre avec une énergie d'activation E_a.



Figure II.1 : Théorie de volume libre

- La seconde est une approche moléculaire où la diffusion d'eau serait liée à la présence de sites polaires dans les chaînes du polymère. Selon cette théorie, le matériau qui possède de nombreux sites hydrophiles, se lie doublement (et parfois triplement) avec chaque molécule d'eau par l'intermédiaire de liaisons hydrogènes. La diffusion se ferait alors d'un site à l'autre, par un phénomène de piégeage- dépiégeage (la molécule d'eau doit se dépiéger d'un site et puis migrer pour se trouver de nouveau piégée sur un autre site).



Figure II.2 : Théorie moléculaire

II.1.2. Modèle mathématique

Les deux phénomènes de diffusion décrits précédemment peuvent être décrits par plusieurs modèles mathématiques, dont le modèle de Fick. Ce modèle de diffusion suppose que le milieu de diffusion est macroscopiquement isotrope, que la structure et les caractéristiques de diffusion sont les mêmes relativement aux différentes directions de diffusion en tous points de ce milieu. Il peut être présenté brièvement comme suit : si nous admettons que des molécules d'eau introduites dans le matériau sont susceptibles de se déplacer d'une région de forte concentration vers une région de faible concentration, le flux d'eau à travers notre matériau est décrit par l'équation :

$$J = -D \frac{\partial C}{\partial x}$$
(II.1)

où :

J : le flux de diffusion par unité de surface,

Liaison hydrogène

 $\partial C/\partial x$: le gradient de concentration normalement à la surface de diffusion

D : coefficient de diffusion

Le coefficient de diffusion suit une loi d'Arrhenius :

$$D = D_0 \exp(-\frac{E_a}{kT})$$
(II.2)

L'énergie d'activation E_a représente la barrière énergétique que les molécules d'eau ont à franchir pour sauter d'un site à l'autre dans la matrice du matériau. En absence de champ électrique, l'énergie de saut est fournie par l'agitation thermique (kT).



Figure II.3 : Mécanisme de saut d'une molécule d'eau dans la matrice du matériau

La première loi de Fick se transforme en considérant qu'il y a une conservation globale du nombre des molécules d'eau, autrement dit que la différence des flux entrant et sortant dans un volume donné multiplié par le temps est égale à la variation du nombre des molécules dans ce volume pendant le même intervalle de temps. Nous obtenons donc la deuxième loi de Fick [2] :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2}$$
(II.3)

Cette équation régit l'évolution de la concentration en eau en fonction du temps et de la profondeur. La résolution des équations Fick, dans notre cas, sera traitée avec les conditions suivantes:

- Le coefficient de diffusion D reste constant au cours du temps
- Les échantillons ont une forme de disque mince. Les surfaces exposées à l'eau sont supposées infinies, ce qui veut dire que les dimensions latérales sont très grandes devant l'épaisseur h, h<<2R et R est le rayon de la surface, la diffusion aura donc lieu principalement à travers ces deux surfaces (pas de diffusion par les bords).
- Avant d'être immergés dans l'eau, les échantillons ne contiennent pas d'eau :

$$t < 0, C_{0 < x < h} = 0$$

 A t=0, les surfaces du matériau se mettent instantanément à l'équilibre, c'est à dire que la concentration de surface est toujours à saturation :

$$t \ge 0, C_{x=0} = C_{x=h} = C_{\infty}$$

La concentration à la saturation C_{∞} correspond à la limite de solubilité d'eau dans le matériau. Elle ne dépend que de la teneur en eau du milieu extérieur (elle est indépendante de la température, dans la mesure où la température ne conduit pas à une modification structurale du matériau).

Avec les conditions ci dessus, la solution de l'équation II.3 est [3] :

$$\frac{C}{C_{\infty}} = 1 - \frac{4}{\pi} \sum_{j=0}^{\infty} \frac{1}{(2j+1)} \sin \frac{(2j+1)\pi x}{h} \exp[-\frac{(2j+1)^2 \pi^2 Dt}{h^2}]$$
(II.4)

La masse totale d'eau qui a diffusé dans le matériau est obtenue par intégration de l'équation II.4 à travers l'épaisseur :

$$m = \int_{0}^{h} C dx$$
(II.5)

Le résultat de cette intégration est :

$$\frac{m}{m_{\infty}} = 1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{j=1}^{\infty} \frac{1}{(2j+1)^2} \exp\left[-\frac{(2j+1)^2 \pi^2 Dt}{h^2}\right]$$
(II.6)

L'équation (II.6) peut être approximée par [3] :

Si Dt/h²<0,05 :
$$\frac{m}{m_{\infty}} = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{Dt}{h^2}}$$
 (II.7)

Si Dt/h²>0,05 :
$$\frac{m}{m_{\infty}} = 1 - \exp\left[-7,3\left(\frac{Dt}{h^2}\right)^{0,75}\right]$$
 (II.8)

La relation (II.7) montre l'allure de la variation de masse au cours de temps. La masse varie initialement en $t^{1/2}$, ce comportement est souvent utilisé pour vérifier le comportement « fickien » d'un matériau.



Figure II.4 : Illustration du changement de la cinétique de sorption avec un comportement « fickien »

Dans les composites à fibres longues, le coefficient de diffusion perpendiculaire (Dp) et parallèle (D₁) à la direction des fibres sont très différents. Il s'avère nécessaire de prendre en compte les problèmes d'anisotropie du coefficient de diffusion. En se basant sur des analogies thermiques et électriques, Shen [3] suppose que la diffusion dans les deux sens ne dépend que du coefficient de la matrice époxyde D_r et de la fraction volumique en fibres V_f selon les relations suivantes :

$$\mathbf{D}_{1} = (1 - \mathbf{V}_{\mathrm{f}})\mathbf{D}_{\mathrm{r}} \tag{II.9}$$

$$D_{p} = (1 - 2\sqrt{\frac{V_{f}}{\pi}})D_{r}$$
 (II.10)

Dans ces relations, la diffusion dans la matrice contrôle entièrement le processus et la diffusion interfaciale n'est pas prise en compte. Pollard [4] propose une méthode pour déterminer les coefficients dans les deux directions par estimation des flux pénétrant par les faces latérales (direction parallèles aux couches de renfort). Dans cette méthode le flux total entrant dans un échantillon est assimilé à la somme des flux entrant par les différentes faces [4,5] et il suppose qu'il n'y a pas d'interactions entre ces flux, ce qui n'est une approximation valable qu'aux temps courts. La sorption à travers une surface A_i peut être assimilée à la diffusion d'une quantité d'eau m_i dans un milieu semi-infini :

$$m_i = 2A_i C_{\infty} \sqrt{\frac{Dt}{\pi}}$$
(II.11)

La quantité totale de diffusant m entrant dans un échantillon de géométrie cylindrique est donc:

$$m = 4C_{\infty}\sqrt{\frac{t}{\pi}} \left(\pi R^2 \sqrt{D_p} + \pi Rh \sqrt{D_1}\right)$$
(II.12)

Or
$$C_{\infty} = \frac{m_{\infty}}{V_{\text{échantillon}}} = \frac{m_{\infty}}{\pi R^2 h}$$
 ce qui permet d'obtenir la relation suivante:

$$m = \frac{4m_{\infty}}{\pi R^2 h} \sqrt{\frac{t}{\pi}} \left(\pi R^2 \sqrt{D_p} + \pi R h \sqrt{D_1} \right) = \frac{4m_{\infty}}{R} \sqrt{\frac{t}{\pi}} \left(\frac{R}{h} \sqrt{D_p} + \sqrt{D_1} \right) \quad (II.13)$$

L'équation peut être écrite sous la forme:

$$m = \frac{4m_{\infty}}{R} \sqrt{\frac{t}{\pi}} \sqrt{D}$$
(II.14)

Avec:

$$\sqrt{D} = \frac{R}{h} \sqrt{D_p} + \sqrt{D_1}$$
(II.15)

Selon la relation II.15, pour une série d'échantillons cylindrique ayant le même R mais d'épaisseurs h différentes, le tracé de \sqrt{D} en fonction de R/h va donner une droite de pente $\sqrt{D_p}$ qui intercepte l'abscisse x à la valeur de $\sqrt{D_1}$. Cette relation permet de différencier la diffusion dans la direction longitudinale (zones interfaciales) et la diffusion purement perpendiculaire aux couches du matériau.

II.2. Cinétique de prise en eau

II.2.1.Procédure de préparation des échantillons

A partir de plaques du matériau prélevées sur une barre d'alternateur réelle, d'épaisseur d'environ 4mm, des plaquettes ont été usinées par fraisage à sec pour obtenir des épaisseurs calibrées de 1mm, 2mm ou 4mm. Les échantillons sont ensuite découpés à l'aide d'un disque de tronçonnage diamanté pour arriver à une forme cylindrique de diamètre 50mm. Les échantillons sont passés au tour pour obtenir des bords réguliers (Figure II.5).



Figure II.5: Les échantillons usinés pour les mesures de cinétique de reprise en eau

Tous les échantillons ont été séchés pendant une semaine dans une étuve qui est maintenue à 120°C et sous un vide primaire de 10⁻¹mBar. Le but est de déterminer le poids de référence pour chacun d'eux.

L'imprégnation a été réalisée par immersion dans un bain d'eau distillée (conductivité $\sigma_{eau}=1,36\mu$ S.cm⁻¹), à trois températures (60, 90 et 110°C). La cinétique de prise en eau est suivie par des pesées périodiques réalisées avec une balance numérique ayant une résolution de 10⁻⁴ g. Avant chaque pesée, les échantillons sont séchés par contact avec du papier Joseph, puis mis dans une étuve ventilée à 50°C pendant 5 minutes. Cette procédure a pour but d'évacuer l'eau excédentaire à la surface des échantillons, afin de ne peser que l'eau ayant effectivement imprégné la masse des échantillons. Ceci assure également une meilleure stabilité de la teneur en eau, une fois les échantillons retirés du bain.

Si nous considérons que m_0 est le poids de référence d'un échantillon sec et m_i est le poids de l'échantillon au temps i, la reprise en eau est donné par la formule suivante :

$$M = \frac{m_i - m_0}{m_0} \times 100(\%)$$
(II.16)

II.2. 2. Effet de la température

La figure II.6 montre les résultats obtenus pour des échantillons d'épaisseur 1mm à trois températures de 60, 90 et 110°C



Figure II.6 : Cinétique de prise en eau de trois échantillons d'épaisseur 1mm et comparaisons avec la loi de Fick

Nous observons que plus la température de l'eau est élevée, plus l'imprégnation est rapide, du fait que la diffusion est un phénomène activé en température (confère partie II.1). L'influence de la température est également évidente pour atteindre la saturation : à 110°C le matériau est saturé au bout de 5 jours tandis qu'à 60°C nous n'obtenons la saturation qu'après 2 mois. Notons que la valeur de saturation n'est pas rigoureusement la même pour les différentes températures:

- pour T= 60°C, $m_{\infty} = 1,33\%$
- pour T=90°C, m_∞ =1,42%
- pour T=110°C, m∞=1,38%

Nous pouvons conclure que m_{∞} est aux alentours de 1,4% en moyenne. Les résultats mettent en évidence que jusqu'à 110°C, la structure du matériau reste stable car s'il y avait eu des dommages mécaniques importants (délaminations des interfaces, micro craquelures...) qui conduisent à la création de micro cavités, on aurait observé des reprises en eau plus importantes, en particulier pour la température la plus élevée.



Figure II.7 : Comportement « fickien » du matériau aux premiers temps de l'imprégnation

La figure II.6 est retracée avec une échelle plus petite dans la figure II.7. Nous constatons que la loi de Fick est bien vérifiée pour t< $2^{1/2}$ h, $3^{1/2}$ h et $5^{1/2}$ h respectivement pour 110°C, 90°C et 60°C. Si nous adoptons m_∞=1,38% ; 1,42 et 1,33% comme valeur de saturation pour ces trois températures, le coefficient de diffusion est obtenu en prenant la pente à l'origine et m_∞ selon la formule [3] :

$$D = \pi \left(\frac{h}{4m_{\infty}}\right)^{2} \left(\frac{m_{2} - m_{1}}{\sqrt{t_{2}} - \sqrt{t_{1}}}\right)^{2}$$
(II.17)

T(°C)	60	90	110
$Pente(\%/h^{1/2})$	0,088	0,12	0,184
D(mm ² /h)	8,57.10 ⁻⁴	1,39.10-3	3,81.10 ⁻³

Les coefficients sont calculés et donnés dans le tableau II.1 :

Tableau II.1 : Le coefficient calculé à trois températures

Nous pouvons donc tracer D en fonction de la température dans un diagramme d'Arrhenius (figure II.8). Nous obtenons une énergie d'activation E=0,42eV (9,63kcal/mol). Pour la résine époxy pure, l'énergie d'activation est aux alentours de 10±1,5 kcal/mol [6]. Si nous comparons cette valeur avec la nôtre, nous trouvons que les valeurs sont proches. Ceci nous conduit à penser que le processus de diffusion est dominé par l'influence de la matrice de résine. Les interfaces époxy/mica et époxy/verre ne semblent donc pas jouer de rôle prépondérant. Cette

remarque a également été faite par d'autres auteurs [6] qui trouvent une cinétique de diffusion identique pour une matrice d'époxy et pour la même matrice chargée en fibres de verre.



Figure II.8 : Coefficient de diffusion D dans un diagramme d'Arrhenius

Avec les valeurs de D obtenus pour chacune des températures, nous avons essayé de comparer les courbes expérimentales avec les courbes théoriques de la loi de Fick (équations II.7 et II.8) sur la figure II.6. Nous constatons que dans un premier temps, la loi de Fick se superpose parfaitement avec les points expérimentaux. Si nous nous éloignons de l'origine du temps, les courbes théoriques s'écartent un peu des points mesurés. Ces divergences peuvent être acceptables pour les températures de 90°C et 110°C, mais à 60°C elle est particulièrement importante. Cette déviation peut provenir de l'hypothèse sur la diffusion d'eau dans le matériau avec un seul coefficient de diffusion.

Pour remédier à ce problème, Jacobs et Jones ont proposé un modèle [7] qui se base sur l'expression développée par Shen et Springer [3] décrivant la diffusion de l'eau dans le matériau composite renforcé par des tissus de verre. Dans ce modèle, les auteurs ont divisé le matériau en deux phases qui absorbent de l'eau : une phase moins dense et l'autre dense. Le coefficient de diffusion du matériau dépend seulement de la densité de ces deux phases et il est évidemment inférieur pour la phase la moins dense. Ce modèle néglige la formation de liens hydrogènes existant entre les molécules d'eau et les groupes hydroxyles dans le matériau. Maggana et Pissis [8] ont modifié le modèle de Jacobs et Jones en précisant que la phase la moins dense correspond à la phase qui absorbe majoritairement l'eau comme l'eau libre (mode 1). La diffusion dans la phase dense est contrôlée par la formation de liens hydrogènes entre les molécules d'eau et les sites hydrophiles existant dans le matériau (mode 2). La cinétique d'absorption de l'eau du matériau est représentée par cette formule [8] :

$$m_{t} = m_{1} \left\{ 1 - \exp\left[-7,3 \left(\frac{D_{1}t}{h^{2}} \right)^{0,75} \right] \right\} + m_{2} \left\{ 1 - \exp\left[-7,3 \left(\frac{D_{2}t}{h^{2}} \right)^{0,75} \right] \right\}$$
(II.18)

Dans cette expression D_1 , D_2 , m_1 et m_2 sont les coefficients de diffusion et les pourcentages d'eau à saturation dans les deux phases respectivement. Bien évidemment m_{∞} est égal à $m_1 + m_2$.

Les résultats expérimentaux sont ajustés avec l'équation (II.18) et ils sont montrés sur les figures II.9, II.10 et II.11 pour les trois températures. Les paramètres d'ajustement du modèle Maggana-Pissis (MP) sont présentés sur le tableau II.2. Nous constatons que le modèle MP permet de reproduire le comportement aux trois températures (sauf une légère dérivation de la saturation aux temps longs pour la température de 110°C). Ces résultats tendent à confirmer l'existence de deux modes séparés de diffusion, et que le processus total est la superposition de ces deux modes.

T(°C)	m ₁ (%)	m ₂ (%)	$D_1(mm^2.h^{-1})$	$D_2(mm^2.h^{-1})$
60	0,9354	0,43598	2.10-4	6,55. 10 ⁻³
90	1,29004	0,26013	6,2. 10 ⁻⁴	1,63.10 ⁻²
110	1,44148	0,14374	1,55. 10 ⁻³	1,8. 10 ⁻¹

Tableau II.2 : Paramètres d'ajustement des deux modes de diffusion dans le modèle MP

Selon la théorie de Maggana et Pissis, le coefficient D_1 caractérise la vitesse de diffusion dans la région où les molécules d'eau s'accumulent librement selon la disponibilité des volumes libres dans le matériau. Cette région, appelée « perte » [8], absorbe majoritairement l'eau et elle est considérée comme la démonstration de la théorie du « volume libre » mentionnée dans la partie II.2.1. Par contre, le coefficient D_2 est lié au processus de diffusion dans la région polaire dans laquelle le déplacement des molécules d'eau est décrit par la théorie « moléculaire » (partie II.2.1). La diffusion dans cette partie est contrôlée par la formation des liens entre les molécules d'eau et les groupes hydroxyle du matériau. En observant les figures II.9-II.11, nous constatons que dans tous les cas, D_2 a toujours une valeur supérieure à celle de D_1 (Tableau II.2), la vitesse de diffusion correspondant à la phase 2 est donc toujours plus élevée que celle de la phase 1. Nous remarquons que m_1 augmente avec la température. D'après la théorie MP, ceci correspond
à une augmentation du volume libre avec la température. A l'inverse, m_2 décroît avec la température, ce que la théorie MP attribuent à une liaison hydrogène moins forte.



Figure II.9 : Evolution de deux modes de diffusion et leur contribution au processus total de diffusion à 60°C



Figure II.10: Evolution de deux modes de diffusion et leur contribution au processus total de diffusion à 90°C



Figure II.11 : Evolution de deux modes de diffusion et leur contribution au processus total de diffusion à 110°C



Figure II.12 : Diagramme d'Arrhenius du coefficient de diffusion dans les deux modes de diffusion

La variation de D_1 et D_2 en fonction de la température suit approximativement le comportement d'Arrhenius (Figure II.12). Les énergies d'activation calculées pour les deux phases sont respectivement 0,46eV (10,58kcal/mol) et 0,73eV (16,77kcal/mol). Ces résultats montrent que l'énergie d'activation nécessaire pour sauter entre deux sites hydrophiles (mode « moléculaire ») est largement supérieure à celle nécessaire pour sauter entre deux espaces libres (mode « volume libre »). En outre, la différence entre deux coefficients devient de plus en plus

faible à basse température tandis que D_2 manifeste une valeur prépondérante par rapport à celle de D_1 à haute température. Ceci explique qu'un seul mode de diffusion (comportement fickien) puisse décrire la cinétique de sorption du matériau à température élevée. Lorsque la température baisse, la diffusion dans la phase 1 est comparable avec celle dans la phase 2, la diffusion dans le matériau doit être donc décrite par la superposition de deux modes de diffusion.

II. 2. 3. Effet de l'épaisseur

Dans le cas précédent, pour arriver rapidement à saturation les échantillons ont été usinés pour obtenir une épaisseur de 1mm, pour cette épaisseur l'effet de bord a été négligé. Pourtant, ce cas est loin d'approcher la réalité car le matériau en service a une épaisseur approximative de 4mm. Dans cette partie, la cinétique de diffusion sera suivie à 3 épaisseurs différentes : 1mm, 2mm et 4mm pour étudier l'influence d'une diffusion éventuelle dans les surfaces latérales de l'échantillon et pour déterminer les coefficients de diffusion dans les deux directions perpendiculaires et parallèles aux couches à partir de la relation II.15.

Les résultats de la figure II.6 ont montré qu'à 60°C le temps est trop long pour atteindre la saturation (2mois pour 1mm) tandis qu'à 110°C l'eau s'évapore très vite de l'enceinte et ceci demande un volume d'eau important pour atteindre la saturation. La température de 90°C satisfaisant à la fois aux contraintes de temps d'imprégnation et à un volume raisonnable d'eau distillée utilisée, elle a donc été sélectionnée pour les essais.



Figure II.13: Cinétique de prise en eau à 90°C pour trois épaisseurs différentes

La figure II.13 représente la cinétique de diffusion de trois échantillons de même forme (cylindrique) ayant le même rayon (25mm) et trois épaisseurs différentes: 1, 2 et 4mm en fonction de $t^{1/2}$. Il est évident que plus l'échantillon est épais, plus la vitesse d'imprégnation est

lente. Par contre, les valeurs de prise en poids à l'équilibre semblent varier de manière importante, et sont beaucoup plus élevées dans les échantillons épais. Nous enregistrons un comportement non « fickien » marqué par l'augmentation anormale des prises en poids pour les échantillons de 2mm et de 4mm après un temps d'imprégnation suffisamment long. Cette augmentation « anormale » apparaît après environ 300h et 120h pour les épaisseurs de 2mm et 4mm respectivement. Un tel comportement est très probablement dû à des dommages macroscopiques, comme des microfissures ainsi que l'a observé Chateauminois [5] sur des composites similaires à température élevée (90°C). Cependant, la question se pose de savoir pourquoi ces dommages ne se manifestent pas pour l'échantillon de 1mm. Ce phénomène suggère qu'il y a un effet d'épaisseur sur la stabilité de la structure du matériau. Dans l'échantillon mince, les effets de pression osmotique, qui sont associés à des contraintes de gonflement différentielles apparaissant dans la matrice [9], ne sont pas suffisamment grands pour créer des dommages macroscopiques importants au sein du matériau. Lorsque l'épaisseur devient grande, la structure du matériau est de plus en plus faible et l'effet associé à la sorption de l'eau va engendrer des dommages qui augmentent anormalement la prise en poids. Ceci pourrait expliquer le fait que le temps d'apparition de défauts diminue lorsque l'épaisseur augmente (figure II.13). L'apparition de défauts pour les échantillons épais ne nous permet pas d'utiliser la loi de Fick pour décrire le comportement du matériau, par conséquent nous ne pouvons pas tirer de conclusions sur la diffusion dans la direction parallèle aux couches. Ces courbes nous servirons néanmoins à calibrer la teneur en eau du matériau en fonction du temps d'imprégnation dans les mesures diélectriques ultérieures.

II.2.4. Comportement du matériau aux temps très longs

La saturation de la teneur en eau a été maintenue pendant quelques semaines et ensuite une diminution du poids du matériau a été enregistrée si nous continuons l'imprégnation. Cependant, nous avons décidé d'arrêter les mesures car ces essais nécessitent un temps très long. Dewimille [10], dans une étude sur un matériau comparable au nôtre, a suggéré que ce phénomène est dû à l'apparition et au développement de décohésions fibre-matrice et de fissures dont la conséquence est de favoriser les pertes en matière (lavage). Les cinétiques des poids résiduels après étuvages mettent en évidence très clairement ces phénomènes [10, 11].

II.3. Conclusion

Les mesures de sorption en eau à trois températures pour une épaisseur de 1mm mettent en évidence la contribution de deux mécanismes de diffusion de l'eau dans le matériau :

- Le mécanisme de diffusion faisant intervenir le volume libre dans la phase moins dense (mode 1), la vitesse de diffusion correspondant à ce mode est relativement faible par rapport au deuxième mode, en particulier à température élevée, et le temps pour atteindre la saturation est beaucoup plus long.
- Le mécanisme de diffusion dans la phase dense qui est relié à l'interaction entre les molécules d'eau et les groupes polaires existant dans le réseau macromoléculaire (mode 2). La vitesse de diffusion de ce mode est supérieure à celle du mode 1.

Bien que le processus global présente une déviation par rapport au comportement fickien en particulier à basse température, la somme des deux modes « fickiens » ci-dessus exprime bien la cinétique de diffusion du matériau. Le coefficient de diffusion des deux modes qui caractérise la vitesse d'imprégnation varie avec la température selon un comportement d'Arrhenius.

La prise en poids d'eau à l'équilibre des échantillons de 1mm montre une stabilité de ces échantillons vis à vis de la température. Ceci montre que la structure du matériau à cette épaisseur ne subit aucune défaillance importante sous l'effet de la température élevée pour les durées considérées (<2mois).

Les mesures de la cinétique de sorption d'eau avec des épaisseurs différentes, qui avaient pour but initial d'étudier l'anisotropie de la diffusion d'eau, ne permettent pas d'obtenir des résultats satisfaisants car la stabilité structurale du matériau semble se dégrader lorsque nous augmentons son épaisseur. L'augmentation en épaisseur conduit à des dommages macroscopiques qui sont dus probablement à des contraintes de gonflement différentielles au sein du matériau, cequi provoque une prise en poids à l'équilibre ayant des valeurs différentes suivant l'épaisseur.

Finalement, dans le but de maîtriser la quantité d'eau absorbée dans le matériau pour les mesures diélectriques ultérieures, l'imprégnation à 90°C a été choisie puisqu'elle satisfait aux deux conditions : une durée d'imprégnation courte, et une quantité raisonnable d'eau distillée utilisée.

Références bibliographiques

[1] Monier C. « Modélisation de la cinétique de diffusion de l'eau dans les polymères », Rapport de stage LTVP-ENSAM Paris, 2000

[2] Crank J. « The mathematics of diffusion », Clarendon Press, Oxford, 1975

[3] Springer S. G., «Environmetal Effects on Composite Materials», Technomic Publication, 1981

[4] Pollard A.et al., « Influence of hydrostatic pressure on the moisture absorption of glass fibre-reinforced polyester », Journal of Materials Science, Vol. 24, pp.1665-1669, 1989.

[5] Chateauminois A. « Comportement Viscoélastique et Tenue en Fatigue Statique de Composites Verre/Epoxy Influence du Vieillissement Hygrothermique », Thèse de l'Université Claude Bernard Lyon I, 1991

[6] Marsh et al. « Moisture solubility and diffusion in epoxy and epoxy glass composites » IBM J. Res. Develop Vol. 28(6), pp.18-25, 1984.

[7] Jacobs P. M. et Jones F. R., « Diffusion of Moisture into Two Phase Polymers », Part I et II, Journal of Material Science Vol. 24, pp.2331-2336 et pp.2343-2348, 1989.

[8] Maggana C. et Pissis P., « Water Sorption and Diffusion Studies in an Epoxy Resin System », Journal of Polymer Science : Part B : Polymer Physics, Vol. 37, pp.1165-1182, 1999.

[9] Jones C.J. et al. « The environmental fatigue of reinforced plastic » Composites, Vol 14(3), p.288, 1983.

[10] Dewimille B. « Vieillissement hygrothermique d'un matériau composite fibres de verre-résine époxyde », Thèse de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 1981.

[11] Levallois A. L. « Etude du vieillissement d'un matériau composite isolant (résine époxyde-mica-fibre de verre) exposé à l'humidité », Rapport du stage DEA, Université Joseph Fourrier, 2004.

Chapitre III

Caractérisation électrique du vieillissement

hydrothermique

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats des mesures électriques et diélectriques pour caractériser l'influence du vieillissement hydrothermique. Tout d'abord, la tension de claquage sera mesurée pour montrer l'influence du vieillissement sur la tension de rupture du matériau. Ensuite les mesures de spectroscopie diélectrique sous multiples contraintes combinées avec le vieillissement hydrothermique sont présentées afin de s'approcher des conditions réelles de service du matériau (température, champ). Dans le but d'étudier les phénomènes de relaxation dans le matériau, les courants de polarisation et de dépolarisation sont également suivis pendant le processus de vieillissement.

III.1. Mesures de claquage sous champ alternatif

III.1.1. Préambule

Dans les conditions réelles d'utilisation, la tension nominale appliquée aux conducteurs des barres (figure II.1) est environ 13kV. Si le matériau d'isolation est contaminé par de l'eau comme décrit dans I.5, son endurance diélectrique peut être modifiée. Les mesures de claquage sous tension alternative à 50Hz ont pour but de mettre en évidence l'influence de l'eau sur la tension de rupture du matériau.

III.1.2. Cellule de mesure



Figure III.1 : Système d'électrodes pour l'étude du claquage

Le système d'électrode utilisé est une géométrie sphère-plan pour créer un champ électrique faiblement divergent. L'électrode sphère portée à la haute tension est en inox, de diamètre 25mm. L'électrode plane à la masse est un disque de diamètre 36mm dont le bord est arrondi (figure III.1).

Avec cette géométrie, un champ faiblement divergent de valeur $E_s=V/d$ (V est la tension appliquée et d l'épaisseur) apparaît dans l'échantillon sous le point de contact. Si le matériau ayant la permittivité $\varepsilon_s(\cong 4,6)$ est testé dans une atmosphère gazeuse avec une permittivité $\varepsilon_m \cong \varepsilon_0$,

à proximité du point de contact dans le milieu environnant, le champ E_m est renforcé dans le rapport $\varepsilon_s/\varepsilon_m$. Aussi, pour une tension inférieure à la tension de claquage du matériau, il commence généralement à apparaître des décharges partielles [1] à ce point comme indiqué dans la figure III.1. Ces décharges se propagent sur la surface de l'échantillon et peuvent provoquer le claquage en dehors de la zone de champ uniforme.

Pour remédier à ce problème, il est possible, soit d'augmenter la tension d'initiation des décharges de l'environnement, soit de réduire le rapport $\varepsilon_s/\varepsilon_m$. Nous avons testé deux solutions :

- Remplacer l'air environnant par un gaz de meilleure tenue diélectrique : du SF6 sous pression (jusqu'à 10 Bars)
- 2. Remplacer l'air par un liquide avec ε_m plus élevé que 1 : huile de transformateur, $\varepsilon_m=2,2$



Figure III.2: Photographie de la cellule de claquage

Pour réaliser ces solutions une cellule spéciale a été réalisée, capable de supporter une haute tension alternative jusqu'à 80kV efficace en alternatif sans décharges partielles et une pression jusqu'à 10Bars. Cette cellule est constituée d'un corps cylindrique creux (Figure III.2) d'une épaisseur de 35mm et d'un diamètre de 120mm. Ce corps est équipé de deux fenêtres en verre permettant de visualiser le système d'électrodes. Un tore haute tension d'un diamètre de 25cm permet d'effectuer la connexion avec l'alimentation haute tension (transformateur 100kV maximum) sans décharges couronnes. Une résistance haute tension de 1k Ω est insérée entre le transformateur et la cellule pour limiter le courant lors du claquage. Le niveau de décharges partielles est visualisé par un oscilloscope LC334AL 500MHz (Le Croy) qui est relié à la cellule à travers un système de filtre RLC qui sert à capter les décharges partielles. Le schéma complet est représenté sur la figure III.3



Figure III.3 : Schéma général utilisé pour des essais de claquage

Les essais réalisés avec du SF6 sous pression (10 bars maximum) n'ont pas été satisfaisants. En effet, la tension d'apparition de décharges partielles a été nettement augmentée (20kV par rapport à 5kV dans l'air), mais le claquage par contournement de l'échantillon apparaît pour une tension d'environ 40kV, inférieure à la tension de claquage du matériau lorsque celui ci est sec.

La deuxième solution avec de l'huile minérale a été utilisée selon cette procédure :

- Immersion de l'échantillon dans l'huile, le système d'électrode n'est pas pressé contre l'échantillon.
- La cellule est pompée sous vide pendant 10mn. Ceci provoque l'évacuation des bulles de gaz résiduelles, en particulier à l'interface échantillon/huile
- Rupture du vide et ensuite mise de la cellule sous pression de 5Bar de SF6 au-dessus de la surface libre de l'huile. Cette procédure a pour but d'éliminer totalement d'éventuelles cavités gazeuses, et d'améliorer la tenue de l'huile.
- 4. Le système d'électrodes est ensuite serré sur l'échantillon afin d'assurer le contact sur toutes les surfaces des électrodes.
- 5. La tension alternative à 50Hz est appliquée avec une vitesse de 1kV/s jusqu'au claquage.

La totalité de cette procédure dure environ 15mn et nous pouvons donc supposer que l'huile à température ambiante diffuse faiblement dans le matériau pendant ce temps.

Avec cette solution, le comportement vis à vis des décharges partielles est nettement amélioré par rapport à la solution précédente. Des décharges de faible intensité sont observées pour des tensions supérieures à environ 50kV, mais qui ne provoquent pas le claquage par contournement comme dans le cas du SF6. Nous avons donc retenu cette solution pour les mesures de claquage.

III.1.3. Résultats des mesures de claquage

La figure III.4 montre le résultat des mesures de claquage réalisées sur les échantillons en fonction de leur teneur en eau. Les champs indiqués correspondent à la valeur crête du champ de claquage, calculé en tenant compte de l'épaisseur réelle de chaque échantillon. Les échantillons utilisés ont une forme ronde de diamètre 50mm, et une épaisseur de 1mm. Le taux d'humidité des échantillons imprégnés est déduit à partir des courbes d'étalonnage établies dans le chapitre II.



Figure III.4 : Champ de claquage (valeur crête) en fonction de la teneur en eau

III.1.3.1. Echantillons secs

Les essais ont été réalisés avec 5 échantillons secs et nous observons une dispersion du champ de claquage (46,6-85,4kV/mm) dans ces conditions. Comme nous avons mentionné dans III.1.2, des décharges partielles dans l'huile sont souvent apparues pour des tensions d'environ 50kV, inférieures à la tension de claquage pour les échantillons secs. Il est possible que celles ci conduisent à sous-estimer légèrement le champ de claquage du matériau sec. En effet, les

décharges dans l'huile à la périphérie du point de contact peuvent déclencher prématurément le claquage de l'échantillon.

De fait, l'observation des échantillons après claquage montre que la perforation du côté de l'électrode haute tension se situe à la périphérie du point de contact (voir figure III.5). De l'autre côté (côté masse), le point de perforation ne débouche pas en général en face, mais à une certaine distance (quelques millimètres). Ceci indique que le claquage ne se propage pas en ligne droite dans le matériau. Il est très probable que l'arc dans le matériau suive un trajet tortueux qui contourne les feuilles de mica, dont le champ de claquage est supérieur à celui de la résine époxy. Pour expliquer le mécanisme de ce type de claquage, Kutil et Fröhlich ont proposé un mécanisme [2] dans lequel le claquage est initié par les décharges partielles dans les microcavités aux interfaces entre la résine et le renfort, ces hypothèses proviennent des observations de décharges partielles dans les matériaux composites.

Etant donné que le claquage ne débouche pas immédiatement sous la sphère, la cellule n'est pas totalement court-circuitée par la perforation du solide : nous avons essayé de réappliquer une rampe de tension sur un échantillon claqué, le claquage survient de nouveau pour une tension non nulle (quelques kV). Cette observation nous permet de supposer que le claquage ne commence pas au niveau du matériau mais par des décharges dans l'huile.



Figure III.5 : Trajet typique de l'arc dans des échantillons secs

III.1.3.2. Echantillons humides

Pour les échantillons humides, nous avons effectué les mesures pour trois taux d'humidité: 0,4 ; 0,8 et 1,4%. Dans ce cas, des décharges dans l'huile ne sont plus observées avant le claquage. Le claquage ne suit toujours pas une ligne droite mais l'arc commence toujours au point de contact sous la sphère (figure III.6). Enfin, la cellule est totalement courtcircuitée : l'application d'une faible tension génère un très grand courant (de l'ordre quelques dizaines d'ampères) indiquant un claquage total du matériau



Figure III.6 : Trajet typique de l'arc dans des échantillons humides

La courbe III.4 montre une forte décroissance du champ de claquage avec la teneur en eau, les valeurs atteintes sont particulièrement basses pour un solide (20kV/mm). Si nous regardons la position du claquage du côté haute tension dans la figure III.6, nous constatons que le claquage a eu lieu dans le volume du matériau. Cette observation nous permet de négliger l'hypothèse de décharges dans l'huile qui provoqueraient ensuite un claquage total du matériau.

III.1.4. Mécanismes possibles de claquage

Le claquage de type avalanche ne peut pas avoir lieu à ces faibles niveaux de champ (40kV/mm) puisque ce dernier est toujours observé pour des champs aux alentours de 100kV/mm [3]. Ces résultats suggèrent fortement qu'il existe deux mécanismes qui peuvent expliquer les faibles valeurs de champs de claquage dans notre matériau en présence d'eau:

- Le claquage thermique où un échauffement localisé du diélectrique se produit sous l'effet des pertes diélectriques élevées. En général, la conductivité augmente avec la température. Si la chaleur accumulée dans l'échantillon ne s'évacue pas suffisamment vite par conduction thermique ou par rayonnement aux interfaces, le processus conduit à un emballement thermique rapide conduisant à la destruction du matériau. Les mesures de pertes réalisées dans le chapitre suivant montrent en effet des valeurs considérables (tanδ>1) en présence d'eau.
- La redistribution du champ dans le matériau. La présence d'eau dans le matériau est probablement très inhomogène : très forte dans les cavités et aux interfaces, plus faibles dans la matrice époxy, nulle dans le verre et le mica. La forte permittivité de l'eau (ε'=80) produit un renforcement du champ important autour des cavités remplies d'eau (ε_{eau}/ε_{résine}≈20).

III.1.5. Comparaison avec les valeurs publiées et corrélation avec le claquage d'une barre

Les mesures de claquage montrent une très forte dépendance du champ de rupture du matériau à la teneur en eau. Ceci confirme la dégradation de la tension de rupture du matériau en présence d'eau au cours de fonctionnement. Cependant, les valeurs obtenues dans nos expériences avec une teneur en eau de 1 à 1,5% sont de l'ordre de 20kV/mm crête, soit une valeur supérieure au champ nominal de fonctionnement dans une barre (environ 3kV/mm). Rappelons que ces mesures sont effectuées à court terme (environ 1mn) et avec une surface d'électrode faible, elles ne reflètent donc pas ce qu'il se passe en réalité. Pour préciser ce point, la courbe d' « endurance » (champ de claquage en fonction du temps d'application de la tension) du matériau sec est présentée sur la figure III.7. Cette courbe indique un effet du temps assez marqué : par rapport à la valeur à 1 minute (30kV/mm), le champ de claquage chute d'un facteur 3 au bout de 10⁸ secondes (10kV/mm), soit environ 3 ans.



Figure III.7 : Courbe du champ de claquage en fonction du temps pour le matériau sec (documentation Alsthom)

Dans nos mesures à court terme avec le matériau sec, le champ de claquage est environ deux fois supérieur (60kV/mm) probablement à cause de la surface d'électrode très inférieure au cas réel. Si nous cumulons la dégradation due à l'eau (facteur 3, voir figure III.4) avec celle due

au temps (facteur 3 également, voir figure III.7), le champ de claquage pourrait devenir comparable au champ de service, ce qui pourrait expliquer les claquages en service en présence d'eau.

Toutefois, la réalité peut être sensiblement différente de ce raisonnement simple, pour deux raisons :

- Les phénomènes de vieillissement qui déterminent la pente de la courbe III.7 peuvent être très différents en présence d'eau. Ce point très important (vieillissement en présence d'eau) mériterait d'être étudié à l'avenir.
- Comme nous le verrons au chapitre IV, dans une barre réelle le champ est très affaibli dans les zones humides, ce qui contribue à « maintenir en vie » plus longtemps l'isolation.

III.2. Spectroscopie diélectrique

III.2.1. Préambule

Les mesures de claquage ont montré la forte influence du vieillissement hydrothermique sur la tenue diélectrique du matériau. Dans cette partie, nous allons étudier l'évolution des propriétés diélectriques du matériau (la permittivité complexe ε^* et le facteur de perte tan δ) en fonction de la teneur en eau par la méthode de mesure spectroscopique. Ces propriétés seront utilisées comme marqueur du vieillissement du matériau. En outre, la distribution du champ au sein du matériau est fortement influencée par le changement de ces propriétés, la connaissance de ces dernières nous permettra de calculer quantitativement la distribution du champ en présence d'un gradient de concentration d'eau.

III.2.2. Principe de la mesure de spectroscopie diélectrique

La spectroscopie diélectrique est une technique permettant de déterminer les propriétés diélectriques (ϵ^* , tan δ) en fonction de la fréquence, et également, dans certains cas, en fonction de la tension appliquée.

Les méthodes utilisées pour la spectroscopie diélectrique dépendent des gammes de fréquences considérées [4]. Dans la gamme de fréquence de notre étude (quelques mHzquelques MHz), deux méthodes de mesures sont souvent utilisées :

1. Méthode du pont dans laquelle la résistance et la capacité de l'échantillon sont déterminées par l'équilibrage du système [5]

2. Mesure de l'impédance de l'échantillon par l'application d'une tension sinusoïdale de fréquence connue $\omega/2\pi$. Cette tension génère un courant de même fréquence dans l'échantillon mais généralement déphasé de φ par rapport à la tension. Si nous considérons la tension appliquée U(ω)=U₀sin ω t, le courant est alors I(ω)=I₀sin(ω t+ φ) (figure III.8). Si notre matériau est représenté par un circuit d'une conductance G(ω) en parallèle avec une capacitance C(ω) [6] (figure III.8), la relation entre le courant et la tension est:

$$I(\omega) = \{G(\omega) + j\omega C(\omega)\}U(\omega) = Y(\omega)U(\omega)$$
(III.1)

avec $Y(\omega)$ l'impédance de l'échantillon. On a définit la capacité complexe d'un matériau par :

$$C^{*}(\omega) = C'(\omega) - jC''(\omega)$$
(III.2)

où la partie réelle correspond à la capacité ordinaire du matériau alors que la partie imaginaire correspond à la perte diélectrique.

De sorte que :

$$I(\omega) = j\omega C^{*}(\omega)U(\omega)$$
(III.3)

Nous avons :

$$C^{*}(\omega) = \frac{A}{d} \left\{ \epsilon'(\omega) - j\epsilon''(\omega) \right\}$$
(III.4)

Avec d l'épaisseur du matériau, A la surface de contact, $\varepsilon'(\omega)$ et $\varepsilon''(\omega)$ sont respectivement la partie réelle et la partie imaginaire de la permittivité complexe ε^* .

Le facteur de perte est déduit par :

$$\tan \delta = \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'} \tag{III.5}$$



Figure III.8 : Modèle élémentaire d'un isolant avec sa représentation vectorielle



Figure III.9 : Principe de la mesure de spectroscopie diélectrique

III.2.3. Dispositifs de mesure

La mesure utilisée dans notre étude est une mesure d'impédance décrite précédemment. Pour cela, un équipement de marque Programma a été utilisé. Ce système est constitué de deux parties : la partie basse tension IDA200 (figure III.10a) qui peut fournir une tension jusqu'à 200V crête dans la plage de fréquence 10⁻⁴Hz à 1000Hz, un amplificateur haute tension IDA HVU (figure III.10b) avec lequel la tension de mesure peut s'élever jusqu'à 30kV crête dans une plage de fréquence de 10⁻⁴Hz jusqu'à 100Hz.

Le système d'électrode comporte trois électrodes: l'électrode haute tension, l'électrode de mesure et l'électrode de garde (Figure III.9). L'électrode haute tension sert à l'application de la tension sinusoïdale. L'électrode de mesure a une forme circulaire dont le diamètre est 33mm, elle est branchée à l'électromètre pour mesurer le courant circulant dans l'échantillon. L'électrode de garde connectée à la masse joue un double rôle : d'une part écouler tous les courants ne passant pas directement entre l'électrode haute tension et l'électrode de mesure (courant superficiel), d'autre part réduire la distorsion du champ électrique autour de l'électrode principale. Les électrodes ont été réalisées à l'aide d'un film de cuivre collé avec un adhésif conducteur.



Figure III.10 : Photographie du système Programma ; a : Partie basse tension IDA 200 et b :Partie haute tension IDA HVU

III.2.4. Résultats de mesure

III.2.4.1. Spectroscopie diélectrique à basse tension

Tout d'abord, des mesures diélectriques ont été réalisées à 10V/mm dans la plage de fréquence 10^{-3} Hz à 10^{3} Hz à la température ambiante. L'épaisseur de l'échantillon est de 4mm, (soit approximativement l'épaisseur réelle utilisée dans les barres d'alternateur). Nous avons procédé à des mesures pour différentes valeurs de la teneur en eau : à partir de l'échantillon sec jusqu'à la saturation (environ 2,4% pour 4mm, chapitre II). Dans cette plage de fréquence, la totalité d'une mesure dure 1 heure. Nous avons également suivi la masse de l'échantillon avant et après la mesure et nous avons constaté que le poids est quasiment stable pendant ce temps. Ceci nous permet de supposer que la teneur en eau ne change pas pendant la mesure.



Figure III.11a et b : Propriétés diélectriques du matériau sec

Pour l'échantillon sec, la permittivité diélectrique reste quasiment constante dans toute la plage de fréquence tandis que la perte diélectrique augmente légèrement vers les basses fréquences. Un maximum peu marqué apparaît à 1Hz qui peut être associé à la polarisation interfaciale de type Maxwell- Wagner [7]. Les pertes diélectriques augmentent vers les basses fréquences, ce qui nous suggère une contribution de la conduction ionique (eau résiduelle).



Figure III. 12 : Effet de la teneur en eau jusqu'à 0,18% sur la permittivité



Figure III. 13 : Effet de la teneur en eau jusqu'à 0,18% sur l'indice de perte

Nous allons maintenant analyser l'influence de la teneur en eau sur les propriétés diélectriques du matériau. Pour des raisons de clarté, les mesures diélectriques sont d'abord présentées pour l'échantillon qui a absorbé de l'eau jusqu'à 0,2% (figures III.12 et III.13). Dans la gamme 1000Hz jusqu'à 10 Hz, la permittivité reste quasiment stable comme dans le cas sec.

Pour l'échantillon peu humide (0,05%), cette stabilité s'étend jusqu'à 10^{-1} Hz. En dessous de 10Hz nous avons constaté une forte augmentation de la permittivité vers les basses fréquences. Ce comportement nous suggère un phénomène interfacial lors de l'absorption d'eau : l'eau diffuse dans le matériau et détériore l'adhésion entre la matrice de résine et le renfort, cela va créer des accumulations de charges à l'interface résine-renfort, ces charges vont se comporter comme des dipôles. A haute fréquence, ces dipôles sont insensibles aux changements de fréquence car elles n'ont pas de temps de suivre la fréquence du champ. A basse fréquence, ces dipôles ont suffisamment de temps pour suivre la fréquence du champ et ils contribuent fortement à la permittivité du matériau. L'indépendance de la permittivité à la fréquence pour l'échantillon peu humide (0,05%) nous suggère qu'il y a une teneur critique à partir de laquelle le phénomène interfacial est observable.

La figure III.13 montre une très forte augmentation des pertes diélectriques si la teneur en eau augmente. Pour l'échantillon peu humide 0,05%, l'augmentation des pertes commence vers 10Hz (≈ 3décades en avance par rapport à la courbe de la permittivité- figure III.13), pour un taux d'humidité plus élevé l'augmentation est sur toute la plage de fréquence mesurée. Pour mettre en évidence la contribution de la conductivité qui peut provenir d'ions éventuels, nous avons tracé la courbe $1/\omega$ sur la même figure III.13. L'indice de perte varie en $1/\omega$ si la perte due à la conductivité est prépondérante par rapport aux autres mécanismes. Nous constatons une croissance proportionnelle à $1/\omega$ à basse fréquence pour les échantillons humides. Pour l'échantillon à 0.05%, ε ' présente une plus faible croissance à basse fréquence (en dessous de 10^{-1} ²Hz). Ce comportement implique que l'eau absorbée commence à contribuer à une accumulation des charges aux l'interfaces qui contribuent à l'augmentation de la capacité du matériau. Par ailleurs, les pertes à 0,05% montrent l'influence de l'eau à partir de 1Hz jusqu'à 10⁻³Hz avec une pente en 1/w. Cette observation suggère qu'à faible teneur en eau, l'eau absorbée dans le matériau se comporte comme une matière conductrice et sa contribution aux pertes est principale. Pour une teneur en eau plus élevée, l'eau absorbée présente une contribution très importante à la permittivité (hormis la contribution de la conductivité à la perte). Ce comportement requiert une étude plus approfondie sachant que la conductivité ne peut pas provoquer l'augmentation de la permittivité à basse fréquence.

Pour détecter la dégradation du matériau, ε '' est un « marqueur » plus intéressant que ε ', car les pertes sont plus sensibles à la présence d'eau, en particulier à basse fréquence.



Figure III.14 : Effet de la teneur en eau (jusqu'à la saturation) sur la permittivité



Figure III.15 : Effet de la teneur en eau (jusqu'à la saturation) sur l'indice de perte

Les propriétés diélectriques du matériau jusqu'à la saturation sont présentées sur les figures III.14 et III.15. Nous constatons que dans le cas peu humide (jusqu'à 0,18%) le comportement diélectrique du matériau varie peu à haute fréquence. Quand le matériau est très humide (>0,5%), son comportement varie considérablement avec la teneur en eau. Les pertes sont corrélées avec l'augmentation de la teneur en eau, et nous montrent un comportement quasi-ohmique à basse fréquence. Pour comprendre le mécanisme à l'origine de ce comportement, nous allons analyser en détail les deux phénomènes à basse fréquence que nous avons mentionnés précédemment : la conduction et la polarisation interfaciale de type Maxwell-Wagner :

1. La conduction correspond à un transport des charges d'une électrode vers l'autre, elle ne provoque pas d'accumulation de charge ni de stockage d'énergie dans le matériau. Les pertes correspondent à la conduction varient en 1/f. Lorsque la fréquence tend vers 0, la permittivité du matériau est décrite par les relations suivantes :

$$\varepsilon'(\omega) \to \text{const}$$

$$\varepsilon''(\omega) \propto \frac{\delta_{\text{dc}}}{\omega} \propto \omega^{-1}$$
(III.6)

où δ_{dc} est la conductivité qui est indépendante de la fréquence.

2. La polarisation interfaciale de type Maxwell- Wagner [8,9] qui implique l'accumulation des charges aux interfaces entre les constituants du matériau prévoit le comportement d'un système composite à basse fréquence dans lequel la partie réelle et la partie imaginaire sont exprimées sous forme :

$$\frac{\varepsilon'(\omega) \propto \omega^{-2}}{\varepsilon''(\omega) \propto \omega^{-1}}$$
(III.7)

Ces deux phénomènes à basse fréquence montrent la dépendance de ε '' en fonction de la fréquence selon la loi de puissance ω^{-n} avec n=1. Le comportement du matériau humide observé sur les figures III.14 et III.15 peut être facilement confondu avec la conduction. Le comportement ohmique ($\infty \omega^{-1}$) est tracé sur la figure III.15, nous constatons que ce comportement n'est valable que pour l'échantillon peu humide (0,05%). Pour les taux d'humidité plus élevés, l'indice n est différent de l'unité (n varie entre 0,93 et 0,95). Ce comportement suggère un mécanisme de perte autre que la conduction. De plus, le phénomène interfacial de type Maxwell- Wagner n'est pas dominant si nous regardons la forme des courbes dans la figure III.14 : la pente de ε ' ne suit pas une loi en ω^{-2} .

Le phénomène de dispersion à basse fréquence (Low Frequency Dispersion-LFD) a été étudié par Jonscher pour plusieurs matériaux isolants humides : sables [6], mica [10], verre [11] et feuille de mica [12]. Jonscher [6,13] explique le phénomène en supposant que la réorientation des dipôles ou le transport des charges se fait par des mouvements discrets (saut) contribuant à l'augmentation de ε ' et ε ''. Plus tard, une théorie plus complète a été proposée par Dissado et Hill [14], dans cette théorie ils décrivent la réponse diélectrique dans deux domaines de fréquence: à basse fréquence et à haute fréquence. Il y aurait des « clusters » et le comportement diélectrique serait gouverné par le mouvement des charges entre ces clusters. Le comportement diélectrique à basse fréquence (qui est compatible avec la zone de fréquence dans notre cas) est dû au mouvement inter-clusters où des charges sautent d'un cluster à l'autre à travers le matériau. L'indice n est relié à la structure des clusters, dans notre cas n est approximativement égal à 1, ce qui impliquerait une large distribution de structure. Les clusters dans notre matériau peuvent être des clusters d'eau isolés, des clusters d'eau autour des charges minérales [21] et des clusters de résine humide bien évidemment.

Le mécanisme de polarisation d'électrode [15] peut également contribuer à l'augmentation importante de ε ' et ε '' à basse fréquence dans notre cas. Ce mécanisme est dû à un mauvais transfert des charges à l'interface électrode- isolation. Les charges qui circulent dans la masse du matériau sous l'effet du champ sont « bloquées » à l'interface électrode- isolation, ce blocage forme des accumulations de charges (ou des « charges d'espace ») aux électrodes. Ces « charges d'espace » vont se comporter comme des dipôles [16] qui contribuent à l'augmentation de ε ' et ε ''. Pourtant, ce mécanisme peut difficilement expliquer le comportement de quasi-conduction de ε '' observé à basse fréquence. Dans un travail récent [17] sur l'eau déionisée, les auteurs se basent toujours sur la théorie de charge d'espace et ils supposent que le comportement de ε '' à basse fréquence est dû à des électrons libres dans l'eau.



Figure III.16 : Effet de la teneur en eau à 50Hz

Pour l'application pratique, ε ' et ε '' sont tracés en fonction de la teneur en eau à 50Hz sur la figure III.16. Le comportement à 50Hz peut être divisé en trois régimes : la permittivité et les pertes augmentent légèrement (en premier régime), le deuxième régime voit une augmentation importante des deux, et dans le troisième régime la permittivité semble saturer tandis que les pertes continuent à augmenter proportionnellement à la teneur en eau. Les explications par des phénomènes chimiques au sein du matériau, en particulier aux interfaces entre des constituants, peuvent êtres trouvés dans la littérature [18] mais nous ne les détaillerons par ici. **Conclusion**: Les propriétés diélectriques du matériau sont très fortement influencées par le vieillissement hydrothermique exprimé ici par la teneur en eau dans le matériau, cette influence est particulièrement importante à basse fréquence. Les causes peuvent provenir de plusieurs mécanismes : la dispersion à basse fréquence (LFD), la polarisation d'électrode, la polarisation interfaciale, les électrons libres et l'effet synergique de tous ces mécanismes. L'indice de perte ε '' qui varie continuement en fonction de la teneur en eau sur toute la gamme de fréquence apparaît être un bon « marqueur » du vieillissement, plus sensible que la permittivité ε '. Le comportement de quasi-conduction de ε '' des échantillons très humides suggère que si celui ci est mesuré sous champ élevé, des phénomènes non linéaires peuvent avoir lieu. Ce point est un autre sujet dans notre étude qui sera abordé par la suite. Finalement, le fait que ε ' et ε '' des échantillons très humides (plus de 0,2%) augmentent nettement à 50Hz nous fait conclure qu'en pratique le champ sera fortement perturbé au-delà de cette teneur en eau.

III.2.4.2. Effets de l'épaisseur

La relation entre le champ disruptif (partie III.1.3) et les pertes diélectriques n'a pas été établie jusqu'à présent car les conditions expérimentales (épaisseur) sont assez différentes. Bien que la teneur en eau dans les deux cas soit approximativement la même, la différence d'épaisseur entre les deux cas (1mm et 4mm) peut nous conduire à des conclusions différentes.

Dans cette partie, nous allons étudier l'influence de l'épaisseur sur le comportement diélectrique du matériau et ensuite essayer de déduire qualitativement la relation entre les pertes et la tension de claquage afin de clarifier le mécanisme de rupture du matériau.

La préparation des échantillons ainsi que les électrodes utilisées dans cette partie sont les mêmes que précédemment. La seule différence est l'épaisseur. Le champ appliqué pour la comparaison est de 100V/mm.



Figure III.17 : Effets de la teneur en eau sur la permittivité de l'échantillon de 1mm



Figure III.18 : Effets de la teneur en eau sur l'indice de perte de l'échantillon de 1mm

Les comportements diélectriques du matériau d'épaisseur 1mm sont similaires à celui de 4mm. L'augmentation de la permittivité avec la teneur en eau est moins marquée que celle de l'indice de perte, en particulier à basse fréquence et aux taux d'humidité modérés. Ceci confirme encore une fois la fiabilité de l'indice de perte comme un marqueur de vieillissement du matériau.



Figure III.19 a, b : Effet de l'épaisseur sur les propriétés diélectriques de l'échantillon sec



Figure III.20 a,b : Effet de l'épaisseur sur les propriétés diélectriques de l'échantillon à 0,05%



Figure III.21 a, b : Effets de l'épaisseur sur les propriétés diélectriques de l'échantillon à 0,1%



Figure III.22 a,b : Effets de l'épaisseur sur les propriétés diélectriques de l'échantillon à 0,2%



Figure III. 23 a,b : Effets de l'épaisseur sur les propriétés diélectriques de l'échantillon à 0,5%



Figure III. 24 a,b : Effets de l'épaisseur sur les propriétés diélectriques de l'échantillon à 1%

Les figures III.19-III.24 montrent l'influence de l'épaisseur sur les propriétés diélectriques pour chaque teneur en eau. Nous constatons que la permittivité reste quasiment constante indépendamment de l'épaisseur pour tous les taux d'humidité. Par ailleurs, les pertes dans l'échantillon de 1mm sont un peu plus importantes par rapport à celui de 4mm dans le cas peu humide (jusqu'à 0,1%) et ensuite elle est nettement inférieure pour le matériau très humide. Ce décalage constant des caractéristiques (Figure III.23.b et Figure III.24.b) est très probablement dû à la différence de la conductivité volumique entre les deux cas. Il peut également être une conséquence de l'éffet de l'épaisseur sur les processus de migration d'eau (chapitre II).



III.25 : Effet de l'épaisseur sur la permittivité à 50Hz



III.26 : Effet de l'épaisseur sur l'indice de perte à 50Hz

A 50Hz, l'épaisseur a une influence sur la permittivité diélectrique pour une teneur en eau très élevée (1%, figure III.25). Quand le taux d'humidité atteint des valeurs élevées, la permittivité ainsi que les pertes sont plus importantes pour l'épaisseur de 4mm. Cette observation suggère que si le claquage dans le matériau est d'origine thermique, la figure III.4 a sous-estimé les valeurs de claquage dans le matériau en condition d'utilisation (épaisseur de 4mm), en particulier pour des échantillons très humides.

III.2.4.3. Effets du champ électrique

La spectroscopie diélectrique à basse tension a montré la grande sensibilité des propriétés diélectriques avec le vieillissement hydrothermique, en particulier à basse fréquence. Cependant, en service, le matériau est utilisé à des tensions beaucoup plus élevées (environ 12,5kV ou \approx 3kV/mm). Sous champ élevé, il se pourrait que des phénomènes de non-linéarité apparaissent dans le matériau, surtout dans le cas humide où les phénomènes de conduction sont très

importants. Si cela était le cas, le champ élevé pourrait modifier sensiblement les comportements diélectriques que nous avons observés à faible champ.

L'objectif principal de cette partie est donc de mesurer les caractéristiques du matériau sec et imprégné en fonction du champ, dans le but de se rapprocher des conditions réelles d'utilisation. Ces mesures sont rendues possibles par l'utilisation du module haute tension du système Programma (Figure III.10b).

a. Mise au point de la procédure d'essais sous haute tension

Avec des échantillons d'épaisseur de quelques mm, pour procéder à des mesures sous champ fort (quelques kV/mm), il est nécessaire d'employer des tensions élevées (plusieurs kV). Dans ce cas des précautions spéciales doivent être prises afin d'éviter les problèmes qui proviennent des effets de renforcements du champ : décharges partielles aux bords des contacts ou sur la surface de l'échantillon. Ces effets peuvent perturber nos mesures, et dans le cas le plus défavorable peuvent conduire à un claquage et détruire notre système de mesure.

Pour appliquer un champ le plus élevé possible, il a tout d'abord été décidé d'amincir au maximum les échantillons, tout en garantissant une tenue mécanique correcte ainsi qu'une épaisseur permettant de considérer que les mesures représentent bien le comportement macroscopique du matériau. L'épaisseur retenue a été de 1 mm. Sachant qu'une couche "élémentaire" du matériau se compose d'une feuille de papier mica de 80 µm d'épaisseur et d'une feuille de fibre de verre de 50 µm d'épaisseur, on peut considérer qu'une épaisseur de 1 mm contient à peu près huit couches et que cette épaisseur représente bien le comportement macroscopique moyen du matériau.

Plusieurs solutions ont été essayées pour limiter les décharges partielles qui apparaissent aux bords des contacts : cellule remplie de gaz sous pression, électrode haute tension couverte par un élastomère silicone, et utilisation d'un tore haute tension pour améliorer la distribution du champ. Après avoir mesuré les performances des solutions essayées, la procédure suivante a été adoptée pour la préparation des échantillons (Figures III.27 et III.28):

- Amincissement d'échantillons de 4 mm par fraisage au diamant, jusqu'à obtenir l'épaisseur voulue (1 mm).
- Dépôt d'une couche d'or (par évaporation sous vide) sur la face destinée à recevoir le contact haute tension. Cette couche d'or permet d'assurer une bonne adhérence du contact, et d'éviter des bulles d'air entre la surface de l'échantillon et le contact électrique.
- Application d'un contact en ruban adhésif conducteur sur le contact en or. Ce ruban adhésif en cuivre permettra de souder l'amenée haute tension.

- Positionnement d'un tore conducteur sur le pourtour de ruban adhésif. L'objectif de ce tore est de diminuer le champ à la périphérie du contact haute tension, de manière à éviter les claquages à partir des bords du contact.
- 5. Moulage de l'ensemble du contact haute tension dans du silicone. Le silicone a pour fonction d'empêcher les claquages autour du contact haute tension. Nous avions tout d'abord utilisé de la résine époxy pour mouler le contact. Cette solution n'a pas été retenue car durant son durcissement la résine présentait un retrait trop important qui entraînait une trop forte contrainte sur l'échantillon. Le silicone ne présente pas ce problème.
- 6. Sortie du contact à travers le moulage en silicone à l'aide d'un tube métallique conducteur (amenée haute tension). Cette pièce métallique est soudée sur le ruban adhésif conducteur (cuivre). Elle permet de tenir l'échantillon en position fixe lors des mesures haute tension.
- 7. Application d'un contact en ruban de cuivre adhésif conducteur sur la face arrière. Ce contact permet la mesure du courant (masse), il se compose d'une électrode de mesure et d'une électrode de garde. C'est par la face arrière qu'est faite l'imprégnation en eau. Avant chaque imprégnation on enlève le contact adhésif. Une fois l'imprégnation réalisée, on applique de nouveau le contact pour la mesure électrique. Cette technique permet de suivre les caractéristiques d'un même échantillon en fonction de sa teneur en eau.
- 8. Positionnement de l'échantillon dans une cellule contenant du SF6 sous une pression de quelques bars. L'emploi de ce gaz, au lieu de l'air, permet de limiter les claquages à l'intérieur de la cellule. La cellule (Figure III.29) a été testée pour supporter la pression jusqu'à 10Bar et la tension jusqu'à 50kV sans décharge.

Des essais sur un échantillon sec ont montré les performances du système: nous avons monté la tension jusqu'à 20kV sur l'échantillon sans générer des décharges et cette tension a pu être maintenue pendant une heure sans claquage. Ces essais ont confirmé la faisabilité des mesures.



Figure III.27 : Schéma représentatif de la constitution d'un échantillon utilisé pour les mesures haute tension



Figure III.28 : Photo d'un échantillon utilisé pour les mesures haute tension avant et après enrobage par le silicone



Figure III.29: Photo de la cellule sous SF6 (10 bars) utilisée pour les mesures haute tension

Vu la complexité de la constitution de l'échantillon, la teneur en eau ne peut pas être estimée à partir des courbes d'absorption du chapitre II car dans ce dernier cas l'eau diffuse par toutes les faces du matériau alors que l'une des faces de notre échantillon est cachée par le silicone. En outre, nombreuses sont les interfaces où peut s'accumuler de l'eau dans l'ensemble de l'échantillon comme l'interface silicone/epoxy, électrode/silicone. Comme nous pesons l'ensemble, il devient impossible d'estimer correctement ce que seul notre matériau absorbe. Pour éviter ce problème, une mesure de résistivité a été utilisée pour estimer la teneur en eau. Nous avons mesuré le courant de conduction de l'échantillon après un certain temps d'imprégnation, et il a été ensuite comparé avec les courants obtenus par un échantillon simple (sans système de tore, silicone, électrode...) pour lequel nous connaissons bien la teneur en eau par pesée (Figure III.30). Le tableau III.1 précise l'équivalence entre le courant et le taux d'eau absorbée.



Figure III.30 : Courants à 1000s utilisés pour estimer la teneur en eau (épaisseur 1mm et champ 100V/mm)

Durée d'immersion (h)	0	1	4	48	96
I(A)	1,17.10 ⁻¹³	2,22.10 ⁻¹²	8,16.10 ⁻¹²	2,3.10 ⁻¹⁰	2,38.10 ⁻¹⁸
M _{estimé} (%)	0	0,1	0,13	0,2	0,5

Tableau III.1: Equivalence entre courant et teneur en eau (déduit à partir la courbe III.29) dansl'échantillon haute tension

b. Résultats et Discussion

Les essais ont été effectués à 4 niveaux de champ : 10V/mm, 100V/mm, 1kV/mm et 5kV/mm. Pour l'échantillon sec, le matériau montre un comportement stable en fonction du

champ. Une augmentation légère de la permittivité et de la perte à 5kV/mm (Figure III.31) est observée sur toute la gamme de fréquence.



Figure III.31 : Influence du champ pour l'échantillon sec

Quand de l'eau est absorbée par le matériau, les propriétés diélectriques montrent le comportement habituel que nous avons discuté dans la partie précédente : les pertes et la permittivité augmentent à basse fréquence. L'effet du champ n'a pas engendré de phénomène de non-linéarité par une forte croissance des pertes comme nous l'avions imaginé. Par contre, à basse fréquence la permittivité et les pertes montrent même un comportement inverse : la permittivité augmente alors que les pertes diminuent avec le champ (Figure III.32-III.33). Ce phénomène est connu sous le nom d'effet Garton [19] dont le mécanisme est expliqué comme suit : les charges libres (ions, électrons...) se déplacent au sein du matériau selon la direction du champ avec F= qE est la force créée par le champ E, q est la charge. Le déplacement des charges est limité par la distance d_m entre deux « murs » constitués par exemple par les feuilles de mica. Il existe un champ critique E_c à partir duquel les charges parcourent une distance 2d_m pour revenir à la position initiale pendant une alternance. Si le champ appliqué dépasse cette valeur critique Ec, il existe un laps de temps pendant lequel les charges restent bloquées sur les « murs » avant le renversement du champ. Pendant ce laps de temps, il n'y a plus de conduction et la capacité augmente. Néanmoins, dans ce modèle la chute anormale de la permittivité à basse fréquence sur la figure III.33 n'est pas explicable.



Figure III.32 : Influence du champ pour l'échantillon 0,1% (estimé pour 1h d'imprégnation)



Figure III.33 : Influence du champ pour l'échantillon à 0,13% (4h d'imprégnation)

Notons que la mesure de résistivité pour déduire le taux d'humidité ne semble pas fiable si nous comparons les résultats obtenus avec ceux du paragraphe III.2.4.2. Les propriétés diélectriques mesurées avec la quantité d'eau estimée de 0,1% et 0,13% (Figure III.32 et III.33) sont inférieures à celles obtenues avec l'échantillon contenant 0,05% d'eau estimé par la méthode gravimétrique (Figure III.17 et III.18). Par contre, l'estimation pour l'échantillon imprégné 2 jours dans l'eau à 0,2% semble plus petite par rapport à la réalité. Si nous comparons la figure III.34 avec les figures III.17 et III.18, les paramètres mesurés se trouvent dans la zone de la teneur en eau entre 0,2 et 0,5%. Cela n'est pas étonnant car après plusieurs cycles de manipulation, la structure des échantillons a tendance à se fragiliser : décollement entre le silicone et l'époxy, entre l'électrode et l'époxy.



Figure III.34 : Influence du champ pour l'échantillon 0,2% (estimé pour 2 jours d'imprégnation)

Pour la teneur estimée à 0,5% qui correspondent à 4 jours d'imprégnation (si nous nous reportons aux figures III.17 et III.18, les grandeurs mesurées peuvent correspondre à une teneur en eau supérieure à 1%), un claquage s'est produit vers 1kV/mm qui nous a empêché de continuer les mesures sous champ élevé. En dessous de 1kV/mm, l'influence du champ est quasiment négligeable (Figure III.35).



Figure III.35 : Effets du champ pour l'échantillon 0,5% (estimé pour 4 jours d'imprégnation)

Tous ces facteurs illustrent la difficulté des mesures sous haute tension, et la mauvaise fiabilité des résultats des figures III.32 à III.35. Toutefois, ces résultats apportent des informations intéressantes :

- Ils montrent la quasi-linéarité du matériau jusqu'à 5kV/mm pour les faibles teneurs en eau (<0,2% environ) sur les figures III.31 et III.32
- La présence de l'effet Garton à basse fréquence

c. Seconde procédure d'essais

Pour contourner ces difficultés, nous avons décidé de modifier la méthode de mesure. Nous avons réalisé une cellule de mesure comportant en élastomère silicone conducteur. L'avantage de ce type de matériau provient de sa très grande souplesse. Quand il est pressé sur la surface de l'échantillon, il constitue une électrode qui couvre parfaitement la surface du matériau quelque soit la qualité de la surface. La force appliquée sur les deux surfaces de l'échantillon est contrôlée par le serrage des vis agissant sur les deux parties de la cellule (Figure III.36). Après chaque manipulation, l'échantillon est enlevé par desserrage des vis et peut être de nouveau imprégné dans l'eau. Dans cette nouvelle cellule, le champ appliqué pour les mesures est limité à 1kV/mm afin d'éviter les décharges générées aux bords des contacts.



Figure III.36 : Nouvelle cellule pour mesures haute tension utilisant du silicone conducteur



Figure III.37 : Effets du champ pour l'échantillon sec


Figure III.38 : Effets du champ pour l'échantillon à 0,05%



Figure III.39 : Effets du champ pour l'échantillon à 0,1%



Figure III.40: Effets du champ pour l'échantillon à 0,2%

Sur les caractéristiques du matériau représentées dans les figures III.37-III.40 nous retrouvons l'effet Garton à basse fréquence comme précédemment (le mouvement des charges est bloqué sous champ élevé et à basse fréquence et les pertes diminuent alors que la permittivité augmente).

Notons que l'effet Garton n'apparaît plus pour une quantité importante d'eau. A M=0,5%, la permittivité diminue quand le champ augmente alors que les pertes semblent indépendantes du champ (Figure III.41). Ce phénomène, comme Garton l'a proposé [19], peut être dû à un mécanisme de dissociation des molécules d'eau sous champ élevé ou par l'injection de charges à l'électrode [20].



Figure III.41 : Effets du champ pour l'échantillon 0,5%



Figure III.42 : Effets du champ pour l'échantillon 1%

Pour l'échantillon très humide (1%), les manipulations n'ont pas pu être réalisées à 1kV/mm en raison d'un claquage qui s'est produit lorsque nous avons mis l'échantillon sous tension.



Figure III.43 : Effet du champ à 50Hz sur la permittivité



Figure III.44: Effet du champ à 50Hz sur l'indice de perte

d. Conclusion

A 50Hz jusqu'à 1kV/mm, les caractéristiques diélectriques ne sont pratiquement pas influencées par le champ comme présenté sur les figures III.43 et III.44. Les mesures réalisées avec la première cellule, bien qu'assez peu fiable, montrent que cette conclusion est très probablement valable jusqu'à 5kV/mm, soit une valeur supérieure au champ de service. Ce résultat important montre que des mesures sous champ faible seront suffisantes pour déterminer le comportement diélectrique du matériau dans des conditions de service. Ces mesures confirment également qu'une mesure à basse fréquence donne une sensibilité beaucoup plus

grande à la présence d'eau. Par contre, dans ces conditions la présence de l'effet Garton montre qu'une meilleure sensibilité de détection d'eau est obtenue à champ faible.

III.2.4.4. Effets de l'anisotropie du matériau

Comme le matériau est constitué par des couches de mica et de tissu de verre enrobé d'époxy, il est donc fortement anisotrope. Toutes les mesures effectuées jusqu'à présent ont été réalisées suivant la direction de champ perpendiculaire aux couches. Ceci correspond effectivement à la direction principale du champ dans une barre d'alternateur. Toutefois, dans certaines zones (par exemple aux extrémités des barres) le champ n'est pas uniforme, et il existe une composante du champ parallèle aux couches. L'objectif de cette partie est de comprendre si le comportement diélectrique du matériau est le même dans cette direction des couches.

a. Préparation des échantillons

Un assemblage de plusieurs éléments, comme décrit dans la suite, nous a permis d'obtenir un échantillon avec une surface utile de plusieurs cm² permettant d'appliquer le champ parallèlement aux couches.

Nous avons collé plusieurs éléments de 4mm d'épais (III.45a) avec de la résine époxy pour obtenir un bloc (III.45b) de 20mm environ d'épais. La résine époxy a été choisie puisqu'elle est un des constituants de base du matériau. Le collage a été réalisé sous presse. Le bloc est ensuite usiné pour former une plaque de 4mm d'épais (Figure III.45c). Cet échantillon est ensuite mis dans une étuve à 110°C sous vide pendant une semaine pour compléter le processus de durcissement de la résine et pour évacuer totalement l'eau résiduelle.



III.45a: Eléments d'épaisseur 4mm prêts à être assemblés



III.45b: Bloc obtenu après collage sous presse



III.45c : Echantillon de 4mm usiné dans le bloc

b. Cinétique de prise en eau dans la direction « parallèle »

Pour pouvoir contrôler la quantité d'eau absorbée dans l'échantillon, nous avons mesuré la cinétique de prise en eau sur un échantillon témoin. La courbe d'imprégnation de cet échantillon est montrée sur la figure III.46. Cette courbe est utilisée pour étalonner la quantité d'eau absorbée de l'échantillon dans la figure III.45c en fonction du temps d'imprégnation.



Figure III.46 : Cinétique de diffusion de l'eau pour un échantillon « parallèle »

c. Résultats et Discussion

Le champ crête utilisé pour les mesures diélectriques dans le sens parallèle aux couches est 100V/mm. Les résultats obtenus sont présentés sur les figures III.47 et III.48.



Figure III.47: Effet de la teneur en eau sur la permittivité d'un échantillon parallèle



Figure III.48 : Effet de la teneur en eau sur l'indice de perte d'un échantillon parallèle

Dans la direction parallèle, nous retrouvons qualitativement le même comportement que pour le cas perpendiculaire: la permittivité et l'indice de perte augmentent lorsque la fréquence diminue. Par contre, les propriétés dans le cas parallèle sont beaucoup plus sensibles à la présence d'eau dans toute la gamme de fréquence.



Figure III.49: Comparaison de la permittivité pour une teneur en eau entre 0% et 0,1% (par : parallèle et per : perpendiculaire)



Figure III.50: Comparaison de la permittivité pour une teneur en eau entre 0,2% et 1% (par : parallèle et per : perpendiculaire)

Pour des raisons de clarté, la comparaison des propriétés diélectriques dans les deux directions du champ est effectuée sur deux graphes différents : teneur en eau jusqu'à 0,1% et teneur en eau de 0,2% jusqu'à 1%. En direction parallèle, les permittivités sont toujours plus élevées que celles mesurées en direction perpendiculaire dans tous les cas. Les propriétés diélectriques de l'échantillon parallèle sec montrent même une croissance à basse fréquence. Ce comportement peut être attribué à l'anisotropie des « clusters » dans l'explication du phénomène LFD (discuté dans la partie III.2.3.1). En effet, si l'eau est accumulée préférentiellement aux

interfaces, celles-ci constituent donc des chemins favorables à la conduction, parallèles aux champ. Néanmoins, la polarisation électrode est plus facile à imaginer dans ce cas car les charges peuvent s'accumuler facilement aux électrodes en l'absence de la barrière constituée par les feuilles de mica.



Figure III.51: Comparaison des pertes pour une teneur en eau entre 0% et 0,1% (par : parallèle et per : perpendiculaire)



Figure III.52 : Comparaison des pertes pour une teneur en eau entre 0,2% et 1% (par : parallèle et per : perpendiculaire)

Les courbes de l'indice de perte varient avec la fréquence de manière plus régulière que dans le cas perpendiculaire. Dans le cas parallèle, elles sont presque toutes parallèles avec un décalage défini par l'ajout d'eau. A forte concentration (>0,2%), la pente de ces courbes prend la même valeur quelle que soit la direction du champ. Ce comportement suggère que la distribution

de l'eau dans le matériau arrive plus vite à un état stable dans la configuration parallèle que dans la configuration perpendiculaire. Ceci est confirmé par la vitesse d'imprégnation (figure III.46) dans la configuration parallèle qui est plus rapide que pour le cas perpendiculaire, pour lequel l'eau doit contourner les couches de mica pour arriver aux interfaces.



Figure III.53: Comparaison de la permittivité à 50Hz en fonction de la teneur en eau dans les directions parallèle et perpendiculaire



Figure III.54: Comparaison de l'indice de perte à 50Hz en fonction de la teneur en eau dans les directions parallèle et perpendiculaire

Les figures III.53 et III.54 représentent les propriétés diélectriques dans les directions parallèle et perpendiculaire à 50Hz. A faible teneur en eau ($\leq 0,1\%$), nous observons une très faible différence de permittivité entre les deux cas. Lorsque la teneur en eau croît, la permittivité dans la direction parallèle devient de 4 à 10 fois supérieures et les pertes environ 10 fois

supérieures dans la direction parallèle. Ces différences, spécialement pour les fortes teneurs en eau, montrent qu'une très forte perturbation de la distribution de champ peut exister dans les zones où sa direction n'est pas perpendiculaire aux couches du matériau.

<u>Conclusion :</u> Les mesures dans la direction parallèle aux couches montrent l'existence de l'anisotropie des propriétés diélectriques du matériau en particulier à forte teneur en eau. La permittivité et les pertes sont toujours supérieures dans la direction parallèle quelque soit la concentration en eau. Les mesures réalisées ne sont pas directement représentatives, car les échantillons ont été réalisés avec un procédé et une résine époxy différente du matériau origine. Il serait très intéressant de pouvoir réaliser ces essais sur des échantillons réalisés avec le procédé industriel. Enfin, ces propriétés sont très importantes pour le calcul de la distribution de champ dans le matériau pollué par l'eau.

III.2.4.5. Effets de la température

En service, la température de l'eau à la sortie des barres est d'environ 60°C. Les mesures diélectriques jusqu'à présent ont été faites à la température ambiante. Dans cette partie, nous allons présenter les résultats obtenus en fonction de la température. Ces mesures nous permettront d'approcher plus précisément les conditions de service du matériau.

<u>a. Protocole de mesure</u>

A la température ambiante, la teneur en eau dans le matériau est relativement stable au cours du temps de manipulation (plusieurs heures). Quand la température augmente, l'échantillon peut sécher en cours de mesure. Pour limiter cet effet, la cellule de mesure a été mise dans une enceinte climatique où la température peut être variée de 2°C à 100°C et l'humidité de 10% à 98%. Les mesures ont été effectuées par intervalles décroissants de 10°C à partir de 80°C jusqu'à la température ambiante ($\approx 25^{\circ}$ C) de manière à limiter la variation de teneur en eau pendant les essais. L'humidité dans l'enceinte climatique a été fixée à 65% pour toutes les températures. Ce taux d'humidité est raisonnable et ne forme pas de couches d'eau sur la surface de l'échantillon, en maintenant stable la concentration en eau dans le matériau ce qui a été vérifié par pesée. Le champ appliqué pour les mesures est de 10V/mm. Entre deux mesures à des températures différentes, un temps d'attente de 15mn a été adopté pour pouvoir bien équilibrer la température dans l'échantillon. Pour réduire le temps de mesure, nous avons décidé de ne pas descendre en dessous de 10^{-2} Hz, ceci assure un temps maximal d'essais de 10mn.

b. Résultats et Discussion



Figure III.55 : Effet de la température sur la permittivité, échantillon sec



Figure III.56 : Effet de la température sur l'indice de perte, échantillon sec

La figure III.55 montre l'effet de la température sur la permittivité de l'échantillon sec. Nous constatons une variation importante de la permittivité à haute température. La permittivité présente une nette relaxation accompagnée d'un pic de perte (Figure III.56). La fréquence d'apparition de ce pic dépend nettement de la température et elle se décale vers les hautes fréquences quand la température augmente (Figure III.57). La zone de fréquence où le pic de perte apparaît se trouve toujours aux fréquences faibles (en dessous de 10Hz) suggérant un mécanisme de relaxation lent du type α (longues chaînes moléculaires) ou Maxwell-Wagner (interfaces entre constituants).



Figure III.57 : Diagramme d'Arrhenius de la fréquence d'apparition du pic (matériau sec)



Figure III.58 : Influence de la température sur la permittivité pour une teneur en eau de 0,1%



Figure III.59 : Influence de la température sur l'indice de perte pour une teneur en eau de 0,1%

Pour un échantillon légèrement humide (0,1%), nous discernons toujours le pic de relaxation précédent mais le phénomène LFD domine maintenant les caractéristiques (Figure III.58 et III.59). Le matériau est encore sensible à l'augmentation de la température en particulier à basse fréquence. Ceci peut être attribué aux sauts inter-clusters du phénomène LFD, favorisés par la température.



Figure III.60 : Influence de la température sur la permittivité pour une teneur en eau de 0,2%



Figure III.61 : Influence de la température sur l'indice de perte pour une teneur en eau de 0,2%

Pour l'échantillon très humide (le taux est supérieur à 0,5%), nous constatons le même comportement de la permittivité que celui observé dans la partie III.2.4.1 : la permittivité se décompose en deux parties en fonction de la fréquence, la zone de transition tend à se déplacer vers les hautes fréquences avec l'augmentation de la teneur en eau. L'indice de perte montre toujours le comportement de quasi-conduction une fois que la teneur en eau devient assez importante (\geq 0,2%). Pour les faibles taux d'humidité (0,1% et 0,2%), le comportement de la permittivité est assez complexe à basse fréquence alors que la perte décroît de manière monotone avec la diminution de la température.



Figure III.62 : Influence de la température sur la permittivité pour une teneur en eau de 0,5%



Figure III.63 : Influence de la température sur l'indice de perte pour une teneur en eau de 0,5%



Figure III.64 : Influence de la température sur la permittivité pour une teneur en eau de

1%



Figure III.65 : Influence de la température sur l'indice de perte pour une teneur en eau de 1%



Figure III.66 : Influence de la température sur la permittivité à la saturation



Figure III.67 : Influence de la température sur l'indice de perte à la saturation

L'influence de la température sur les propriétés diélectriques du matériau à 50Hz est représentée sur les figures III.68 et III.69. Nous remarquons dans tous les cas une augmentation légère (<2) de la permittivité à 50Hz. Toutefois, l'augmentation de permittivité avec la température reste faible, comparée à celle due à l'absorption d'eau.



Figure III.68 : Effet de la température sur la permittivité à 50Hz



Figure III.69 : Effet de la température sur l'indice de perte à 50Hz

Les pertes du matériau présentent une sensibilité à la température plus importante que la permittivité. Les pertes sont multipliées par 10 lorsque la température atteint 60°C pour l'échantillon contenant 0,2% d'humidité. Pour les échantillons plus humides ($\geq 0,5\%$), l'augmentation est moins forte (4 à 5 fois). Ce comportement est cohérent avec un mécanisme de claquage thermique comme cause principale de rupture diélectrique en présence d'eau.

<u>Conclusion</u> : La température présente une influence notable sur les propriétés diélectriques du matériau sur toute la gamme de fréquence mesurée. Pour le matériau sec, il y a apparition de pics de relaxation à des fréquences basses et ce pic se décale vers les hautes fréquences lorsque la température augmente. Pour le matériau humide, la dispersion à basse fréquence (LFD) est prépondérante et la température a tendance à augmenter cet effet. L'effet de la température à la fréquence d'utilisation (50Hz) révèle le danger de l'effet combiné température-eau (augmentation des pertes et du risque de claquage thermique).

III.3. Mesure de courants de conduction et de polarisation

III.3.1. Préambule

Comme nous l'avons montré dans la partie III.2, lorsque l'eau diffuse dans le matériau les pertes augmentent, en particulier à basse fréquence. Les pertes semblent reliées principalement à un mécanisme de conduction car proches d'une variation en 1/f. Dans cette partie, des mesures de courants sont faites afin de clarifier les mécanismes de conduction dans le matériau. Il est montré que la mesure de la « résistivité » sous tension continue peut également constituer une méthode de détection d'eau sensible et relativement simple à mettre en œuvre.

III.3.2. Principe de mesure

Pour une capacité remplie par du vide, la relation entre l'induction électrique D(t) et le champ électrique E(t) peut s'écrire :

$$D(t) = \varepsilon_0 E(t)$$
(III.8)

où $\epsilon_0=8,85.10^{-12}$ (F.m⁻¹) est la permittivité du vide.

L'induction électrique D(t) représente les charges électriques sur la surface des électrodes, à l'origine des lignes du champ électrique. Si nous introduisons un matériau diélectrique entre les électrodes, il faut tenir compte également des charges dues aux phénomènes de polarisation. L'induction électrique D(t) est alors augmentée par la polarisation (macroscopique) P(t) du matériau [22]:

$$D(t) = \varepsilon_0 E(t) + P(t)$$
(III.9)

La polarisation P(t) induit tous les types de polarisation comme la polarisation "rapide" (par exemple la polarisation électronique) et la polarisation "lente" (par exemple la polarisation interfaciale). P(t) et E(t) sont reliés par l'équation[23]:

$$P(t) = \underbrace{\varepsilon_0 \varepsilon_r E(t)}_{\text{polarisation rapide}} + \underbrace{\varepsilon_0 \int_0^t f(t) E(t - \tau) d\tau}_{\text{polarisation lente}} (C/m^2)$$
(III.10)

Où: ε_r est la permittivité relative à haute fréquence

 τ est le temps de retard de P(t) par rapport à E(t)

f(t) est la fonction de réponse diélectrique du matériau [6], qui représente l'effet "mémoire" du matériau.

Selon l'équation de Maxwell, un diélectrique soumis à un champ E(t) va générer une densité de courant j(t) qui est la somme du courant de conduction et du courant de déplacement:

$$j(t) = \sigma E(t) + \frac{\partial D(t)}{\partial t} = \sigma E(t) + \varepsilon_0 \varepsilon_r \frac{\partial E(t)}{\partial t} + \varepsilon_0 f(0) E(t) + \varepsilon_0 \int_0^t \frac{df(t-\tau)}{dt} E(t) d\tau \quad (III.11)$$

Supposons que notre échantillon ait été totalement déchargé et qu'un échelon de tension soit ensuite appliqué sur l'échantillon avec les caractéristiques suivantes:

$$U(t) = \begin{cases} 0 & t < 0 \\ U_0 & 0 \le t \le t_1 \\ 0 & t > t_1 \end{cases}$$
(III.12)

Pendant la durée t_1 , le courant traversant l'échantillon est constitué du courant dû à la conductivité du matériau et celui dû à l'activation des différents processus de polarisation. Pour

une géométrie déterminée, le courant de polarisation est exprimé à l'aide de l'équation (III.11) par la formule suivante:

$$i_{pol}(t) = \left(\frac{\sigma}{\varepsilon_0} + \varepsilon_r \delta(t) + f(t)\right) C_0 U_0 \text{ pour } 0 \le t \le t_1$$
(III.13)

avec:

C₀ est la "capacité géométrique" de l'échantillon

 $\delta(t)$ est la fonction delta, qui correspond à l'augmentation soudaine de la tension U₀ à t=0, et provoque une impulsion de courant extrêmement grande.

La première partie de l'équation III.13 est la contribution de la conductivité volumique σ du matériau i_c, la deuxième est le courant de déplacement dans le vide et à haute fréquence, la troisième est le courant de polarisation. Le courant de conduction n'est atteint qu'après un temps suffisamment long lorsque le dernier terme qui correspond à la fonction de réponse diélectrique devient négligeable. La mesure du courant de polarisation peut être stoppé quand le courant devient stable (courant de conduction). Le courant de dépolarisation est obtenu en court-circuitant l'échantillon à partir de t₁ (Figure III.70). Selon le principe de superposition, le courant de dépolarisation est alors:

$$i_{dépol}(t) = (f(t) - f(t - t_1) - \varepsilon_r \delta(t - t_1)) C_0 U_0 \text{ pour } t > t_1$$
(III.14)

Où $\delta(t-t_1)$ correspond à l'annulation de l'échelon de tension

En posant t-t₁=t' (t₁ est la nouvelle origine des temps) et en négligeant la contribution de la fonction delta, le courant de dépolarisation s'exprime par la relation:

$$i_{dépol}(t) = -(f(t') - f(t'+t_1))C_0U_0$$
(III.15)

Pour déduire la fonction de réponse diélectrique f(t) à partir le courant de dépolarisation, on suppose que la fonction de réponse diélectrique est une fonction qui diminue avec le temps. Si tel est le cas et si l'échantillon est déchargé (court-circuité) pendant un temps suffisamment long, nous avons:

$$f(t') >> f(t'+t_1)$$
 (III.16)

La fonction de réponse diélectrique est alors:

$$f(t') = \frac{-i_{dépol}(t')}{C_0 U_0} + f(t' + t_1) \approx \frac{-i_{dépol}(t')}{C_0 U_0}$$
(III.18)



Figure III.70 : Principe de mesure du courant [1]

Dans un matériau, plusieurs processus de polarisation peuvent intervenir avec différentes constantes de temps. La fonction de réponse diélectrique décroît d'une façon monotone, mais généralement elle n'obéit pas à une relation simple qui peut être exprimée par une fonction analytique. De nombreux travaux [6] ont tenté de représenter les donnés expérimentales avec une telle fonction. Nous pouvons citer quelques exemples:

La réponse de Debye avec une seule constante de temps τ:

$$f(t) = A \exp(-t / \tau)$$
(III.19)

- La réponse générale ou la réponse "universelle" pour laquelle la fonction f(t) suit des lois de puissance. Une telle réponse est exprimée par la relation:

$$f(t) = \frac{A}{\left(\frac{t}{\tau}\right)^{n} + \left(\frac{t}{\tau}\right)^{m}}$$
(III.20)

où A est une constante.

La mesure du courant de polarisation est donc une bonne façon de déterminer la fonction de réponse diélectrique du matériau. En pratique, il faut souvent attendre très longtemps pour que le courant atteigne la valeur de conduction i_c . Jonscher [6] a montré que pour déterminer de manière approximative la fonction de réponse diélectrique d'un matériau à partir du courant de

dépolarisation, il faut charger le matériau au moins 10 fois plus longtemps que la durée de la mesure de décharge.

Sans attendre l'équilibre, la conductivité peut être déduite en additionnant l'équation (III.13) et (III.14) avec la condition (III.16), nous avons:

$$\sigma \cong \frac{\varepsilon_0}{U_0 C_0} (I_{pol}(t) - I_{dépol}(t))$$
(III.21)

III.3.3. Dispositif de mesure

Le courant qui traverse le matériau lorsque nous appliquons un champ électrique est mesuré à l'aide d'un électromètre Keithley 614. L'alimentation est de marque Fluke qui peut délivrer une tension continue jusqu'à 2,5kV avec une précision de 0,1V. Le système d'électrodes est le même que pour les mesures de spectroscopie. Le système d'acquisition du courant est piloté par un ordinateur qui est relié à l'électromètre Keithley 614. Le bruit de fond de l'ensemble est d'environ 10⁻¹³A. L'écart de temps entre chaque point de mesure est 1 seconde. L'ensemble de dispositif est présenté sur la figure III.71



Figure III.71 : Représentation schématique du dispositif de mesure de courant

III.3.4. Résultats et discussion

III.3.4.1. Influence de la teneur en eau à court terme.

Les mesures de courants ont été effectuées parallèlement avec celles de spectroscopie diélectrique sur les mêmes échantillons. Un même champ de 10V/mm a été appliqué dans les deux cas. L'évolution du courant a été suivie pendant une durée de 2000s dans le but d'avoir une durée d'expérimentation raisonnable.



Figure III.72 : Evolution du courant en fonction de la teneur en eau (E=10V/mm)

Pour l'échantillon sec, une décroissance classique du courant au cours du temps est observée. Ce courant correspond à la polarisation des dipôles dans le matériau sous l'action du champ. Pour t>100s, le courant passe en dessous de la sensibilité de l'électromètre (10⁻¹³A). Lorsque l'échantillon est humide, nous observons un courant qui se stabilise rapidement dans la fenêtre de mesure (2000s) et qui montre une très grande sensibilité avec l'eau absorbée. Dans les premiers instants, nous observons une décroissance légère du courant et cette tendance est de plus en plus masquée lorsque la teneur en eau augmente. Les valeurs du courant à quatre instants différents sont représentées sur la figure III.73 afin de mettre en évidence le courant de polarisation. Pour les échantillons humides, aucune variation significative du courant n'a été observée pendant 2000s. Ces résultats suggèrent que la conduction est le phénomène dominant en présence d'eau dans ces mesures.



Figure III.73 : Courants isochrones obtenus pour différentes teneurs en eau

Pour l'application pratique, nous avons défini une « résistivité » du matériau à t=100s. Cette résistivité nous permet d'avoir une image de l'état du matériau en faisant des tests rapides. L'influence de l'eau sur cette résistivité est représentée sur la figure III.74.



Figure III. 74 : Influence de l'eau sur la résistivité du matériau, à t=100s

Il existe deux parties sur cette courbe. La partie de faible teneur en eau (M<0,2%) montre une très forte décroissance de la résistivité : la résistivité chute de 4 décades. Dans la deuxième partie qui correspond à la teneur en eau de 0,2% à 1%, la résistivité diminue beaucoup plus faiblement (chute d'une décade). Ce comportement est typiquement dû au phénomène de percolation [24, 25] qui décrit le comportement d'un matériau constitué par une phase isolante et une phase conductrice. Si la fraction volumique de la phase conductrice est sous un certain seuil appelé seuil de percolation x_c , le matériau se comporte comme un isolant parfait dont la résistivité est infinie. Lorsque la dispersion de la phase conductrice dépasse le seuil de percolation, la chute de résistivité du matériau est décrite par la formule [25,26] :

$$\rho = \frac{\rho_0}{\left(x - x_c\right)^t} \tag{III.22}$$

Où :

 ρ_0 : facteur relatif à la phase conductrice

 \mathbf{x} : teneur en eau

 x_c : seuil de percolation

t : exposant critique

Nous avons interpolé la résistivité à 100s avec la loi de percolation en choisissant t=1,6 (valeur théorique correspondant à un réseau de percolation à trois dimensions [25,26]). Nous obtenons $\rho_0=2.5.10^{12}$ et x_c=0.078%. Etant donné que l'eau n'est absorbée que par les interfaces ou par la matrice de résine, le phénomène de percolation n'a lieu que dans la phase de résine. Rappelons que la valeur x_c obtenue précédemment représente le matériau complet composé de résine époxyde et des renforts (mica et tissu de verre), nous convertissons maintenant x_c pour la résine seule. Puisque la résine constitue 33% de poids du matériau composite, le seuil de percolation correspondant à la résine époxyde est de 0,078×3=0,234% du poids. Si la densité de la résine époxyde est 1,2g/cm³, le seuil volumique de percolation de la résine est environ 0,288%. Le seuil volumique dans la littérature [25,27] est toujours plus élevé de l'ordre de quelques %. Cette très faible valeur suggère que l'eau s'accumule principalement aux interfaces du matériau. Cette observation confirme l'existence du mode 1 de diffusion (discuté dans le chapitre II) qui correspond à la diffusion dans des volumes libres. Le comportement de l'eau dans le matériau peut être imaginé de la façon suivante: d'abord l'eau s'accumule aux interfaces epoxy/mica ou epoxy/verre et forme des « clusters », la conduction dans le matériau est assurée par le transport de charges entre ces « clusters ». Plus l'eau entre dans le matériau, plus le nombre des clusters augmente, ce qui entraîne une forte diminution de la résistivité. Ce phénomène correspond à la première partie de la courbe sur la figure III.74. Lorsque la percolation des « clusters » sature (les interfaces sont totalement remplies par l'eau et le trajet de conduction est établi au sein du matériau, M≈0,2%), l'addition d'eau ne provoque plus de coalescences de « clusters », elle conduit seulement à augmenter la section de conduction entre les « clusters » et ceci explique la chute faible de résistivité dans la deuxième partie de la courbe III.74.

III.3.4.2. Application possible à une méthode de diagnostic

La mesure du courant dû à l'application d'un champ local continu peut être une méthode efficace pour détecter la présence d'eau dans l'isolation sans démonter les barres. Cependant, cette méthode n'est applicable que sur la zone de développante. La présence de la peinture conductrice sur la partie droite de la barre rend impossible ces mesures.

Le principe de cette méthode est présenté sur la figure III.75. Un dispositif a été réalisé au LEMD suivant ce principe (Figure III.76). L'alimentation est fournie par une source haute tension qui peut délivrer jusqu'à 1000V. Le courant est mesuré à l'aide d'un picoampèremétre à potentiel flottant, ce picoampèremétre est intégré dans la tête d'une sonde afin de limiter maximum les courants de fuite et de bruit. Les électrodes (électrode de mesure et électrode de garde) de la sonde sont réalisées en mousse conductrice pour permettre une application aisée sur la surface irrégulière d'une barre (Figure III.76).

Les mesures effectuées sur des échantillons et sur des barres réelles à la Division Technique Générale de Grenoble (DTG) au sein de EDF ont donné une bonne corrélation avec les expertises réalisées par la méthode Karl Fisher [28]. Cependant, les mesures réalisées sur deux machines réelles ont donné certains résultats aberrants. Il est possible que la répartition non homogène de l'eau et donc du champ dans une barre réelle (voir chapitre IV) soit à l'origine des problèmes rencontrés.



Figure III.75 : Principe du dispositif réalisé au LEMD pour la détection d'eau par la mesure du courant sur la zone de développante



Figure III.76 : Sonde de mesure du courant (a) et le détail de la tête de la sonde avec les électrodes en mousse conductrice (b)

III.3.4.3. Influence de l'anisotropie



Figure III.77 : Evolution du courant dans le sens « parallèle » (E=10V/mm)

La figure III.77 représente l'évolution du courant dans le sens parallèle aux couches (la structure de l'échantillon a été décrite dans la partie III.2.4.4) mesuré avec la même valeur de champ que dans le cas perpendiculaire (E=10V/mm). Dans ce sens, le temps de 2000s n'est pas suffisant pour atteindre un courant stable comme dans le cas perpendiculaire. Pour l'échantillon sec et peu humide (0,05% et 0,1%), le courant décroît d'une façon monotone mais avec des pentes différentes. Pour les taux d'humidité plus élevés, un courant stable est rapidement atteint.



Figure III.78 : Comparaison du courant entre deux configurations de champ avec la teneur en eau jusqu'à 0,1% (par : parallèle et per : perpendiculaire)



Figure III. 79 : Comparaison du courant entre deux configurations de champ avec la teneur en eau de 0,2% jusqu'à 1% (par : parallèle et per : perpendiculaire)

Les figures III.78 à III.79 comparent les caractéristiques parallèles et perpendiculaires. Pour les échantillons peu humides (Figure III.78), le courant dans le sens « parallèle » montre toujours un temps de relaxation plus grand que dans le sens perpendiculaire. Pour une teneur en eau élevée (de 0,2 à 1%), les courants dans le sens « parallèle » varient beaucoup moins que dans le sens perpendiculaire (figure III.79). Ceci suggère que dans la configuration parallèle, le temps de polarisation des « clusters » est plus long que dans l'autre cas. Cette observation est cohérente avec les théories sur les systèmes hétérogènes constitués d'inclusions conductrices dans une matrice isolante [9]. Dans le cas d'inclusion ayant une forme ellipsoïdale, avec a/b le rapport de l'axe principale aux axes secondaires, on montre que le temps de relaxation (polarisation interfaciale de type Maxwell-Wagner) augmente lorsque a/b augmente (avec un champ E dans la direction de a). Dans notre cas nous pouvons imaginer que les clusters sont des ellipsoïdes allongés dans la direction parallèle. Lorsque le champ est appliqué dans cette direction nous avons un ratio a/b très grand, et un temps de relaxation long. Lorsque le champ est appliqué dans la direction perpendiculaire nous avons un ratio a/b petit, et un temps de relaxation court. Etant donné le mode de fabrication de l'échantillon, les mêmes réserves sur l'application de ces mesures peuvent être faites que dans le cas de mesure de spectroscopie diélectrique.

III.3.4.4. Etude de courant de polarisation

Les mesures de courant de polarisation/dépolarisation sont effectuées sous champ de 100V/mm pour différentes teneurs en eau. Pour satisfaire à la condition de durée de charge mentionnée dans la partie III.3.2, l'échantillon est chargé pendant au moins 10h avant de mesurer le courant de dépolarisation pendant 1h. A cause du temps de montée de la tension qui dure environ 1s, le courant dans les premières 10s n'est pas significatif, il est donc éliminé dans les figures. Le courant de dépolarisation a toujours un signe négatif, mais dans les figures son signe est changé afin de mieux le comparer avec le courant de polarisation.



Figure III.80a et b : Courant de polarisation et dépolarisation avec M=0 et 0,05%

Dans la figure III.80a, les courants de polarisation et dépolarisation de l'échantillon sec sont tracés ensemble jusqu'à 4000s (≈1h). Après 300s, les courant mesurés sont en dessous de la limite de sensibilité de l'électromètre. La superposition entre le courant de polarisation et de dépolarisation montre que le courant de conduction est très petit et que l'énergie absorbée par la polarisation est totalement retournée après la mise en court-circuit. Pour l'échantillon peu humide (0,05%), le courant stable de conduction n'a pas pu être atteint après plus de 10h (Figure III.80b). Dans les premiers temps du processus de charge, nous avons un décalage constant entre le courant de polarisation et le courant de dépolarisation qui peut être attribué au courant de conduction dans le matériau.



Figure III.81 a et b: Courant de polarisation et dépolarisation avec M=0,2% et à la saturation

Lorsque nous augmentons la prise en eau de l'échantillon jusqu'à 0,2%, le courant est toujours long à se stabiliser (Figure 81a). Le courant de polarisation continue de diminuer après plusieurs heures. Pour une teneur en eau très grande (à la saturation), le courant de polarisation est totalement masqué par le courant de conduction (Figure III.81b).

La figure III.82 montre l'ensemble des courants de dépolarisation interpolés selon la loi de réponse "universelle" (équation III.20). Les paramètres du fit sont représentées sur la tableau III.1. Dans ce tableau, la conductivité estimée par l'équation (III.21) est également présentée.

M(%)	А	τ	n	m	$\sigma(\Omega^{-1}.mm^{-1})$
0	1,626.10 ⁻¹²	145,7	0,62	2,38	1.10 ⁻¹⁸
0,05	6,27.10 ⁻¹³	260,73	0,91	2,88	1.10 ⁻¹⁷
0,2	7,2.10 ⁻¹²	324,7	0,85	2,01	2,8.10 ⁻¹⁵
1	9,58.10 ⁻¹⁰	_	0,34	_	3,2.10 ⁻¹³
saturé	5,83.10 ⁻¹⁰	_	0,24	_	2,7.10 ⁻¹³

Tableau III.2:Les paramètres de la fonction de réponse diélectrique et la conductivité estimée par l'équation III.21

Nous constatons que pour les faibles teneurs en eau ($\leq 0,2\%$), la réponse diélectrique du matériau peut être représentée par la loi "universelle". La réponse diélectrique peut être divisé en deux parties dont la transition est marquée par la valeur de τ . Ces deux portions de droite, comme décrites par Jonscher [6], représentent deux processus physiques consécutifs qui ont lieu au sein du matériau



Figure III.82: Les courants de dépolarisation interpolés par la loi" universelle", les points mesurés sont représentés par les symboles alors que les fits sont représentés par les lignes

Pour les teneurs en eau élevée (1% et saturé), nous observons une droite unique avec une pente qui diminue avec l'augmentation de la teneur en eau (0,34 et 0,24). Dans ce cas les valeurs de τ sont probalement décalées hors de la fenêtre de mesure.

<u>Conclusion</u> : Les mesures de courant de polarisation/dépolarisation mettent en évidence l'influence de l'eau sur la polarisation dans le matériau. Grâce à ces mesures, la conductivité du matériau peut être estimée sans confondre avec la contribution des dipôles ayant des temps de relaxation très long. La loi « universelle » décrit relativement bien le comportement du matériau, ce qui suggère l'existence de deux processus physiques qui ont lieu dans le matériau en présence d'eau.

III.3.4.5. Etude de la non-linéarité dans la réponse diélectrique

Quelques essais ont été réalisés pour étudier la non-linéarité des courants en fonction du champ. La procédure de mesure est la même que dans la partie précédente. Le champ appliqué est respectivement de 10V/mm, 100V/mm et 1kV/mm jusqu'à la teneur en eau de 0,5% car le claquage s'est produit à 1% et 1kV/mm.



Figure III.83 : Courants de polarisation/dépolarisation mesurés à trois valeurs de champ pour l'échantillon sec (symbole : I_{pol}; ligne : I_{dépol})

Pour l'échantillon sec, la linéarité du matériau est représentée par le décalage d'une décade entre les courants de polarisation (ou dépolarisation) pour les trois valeurs du champ appliqué (Figure III.83). La superposition entre le courant de charge et décharge comme sur la figure III.80a montre le comportement majoritairement dipolaire du matériau (rôle de la conductivité non détectable).



Figure III.84 : Courants de polarisation/dépolarisation mesurés à trois valeurs de champ pour le taux d'humidité de 0,1% (symbole : I_{pol} ; ligne : $I_{dépol}$)

Pour une concentration en eau de 0,1%, nous voyons apparaître l'influence de la conduction aux temps longs. Dans ce cas, nous observons que ce courant n'est pas proportionnel au champ appliqué (variation d'un facteur 2 alors que le champ varie de 2 décades).



Figure III.85 : Courants de polarisation mesurés à trois valeurs de champ pour le taux d'humidité de 0,5%

A 0,5%, le courant est dominé par la conduction mais ce courant de conduction n'est pas proportionnel au champ (il est pratiquement identique à 100V/mm et 1kV/mm). Cet effet est qualitativement cohérent avec l'effet Garton observé à basse fréquence dans lequel la perte diminue avec le champ appliqué pour la teneur en eau de 0,1% et reste identique à tous les champs appliqués pour 0,5% (Figure III.39 et III.41)

III.4. Conclusion

La diffusion de l'eau dans le matériau provoque une forte dégradation de sa tenue diélectrique (la valeur du champ de claquage à 1,4% d'eau est de 4 fois inférieure à celle de l'état sec). En utilisation, l'épaisseur d'isolation est de 4mm et la teneur en eau peut atteindre 2,5% (voir chapitre II). Nous verrons dans le chapitre suivant quelles sont les corrélations que nous pouvons établir entre la chute de champ de claquage et la tenue d'une barre humide en situation réelle.

La spectroscopie diélectrique est une méthode très efficace de diagnostic de l'état du matériau. Elle est particulièrement sensible à basse fréquence à la présence d'eau. Parmi les propriétés diélectriques mesurées par cette méthode, l'indice de perte est un « marqueur » de vieillissement assez fiable car il est bien corrélé à la teneur en eau dans toute la gamme de fréquence.

Des mesures de spectroscopie diélectrique sous champ élevé ont été effectuées. Les propriétés diélectriques ne dépendent pratiquement pas du champ appliqué jusqu'à 1kV/mm, à part à basse fréquence. A 50Hz, aucune modification importante des propriétés diélectrique n'a

été observée sous champ élevé quel que soit la teneur en eau absorbée. A basse fréquence, l'existence de l'effet Garton provoque un effet inverse à celui habituellement observé : les pertes diminuent quand le champ augmente, ce qui conduit à une sensibilité plus faible pour la détection d'eau par cette méthode.

L'anisotropie physique du matériau conduit à des propriétés diélectriques anisotropiques pour le matériau humide. Lorsque le matériau est sec, les propriétés diélectriques ne sont pas très différentes suivant le sens perpendiculaire et parallèle aux couches du matériau. En présence d'eau, l'anisotropie des propriétés du matériau devient importante. La permittivité et les pertes à 50Hz sont multipliées par dix dans le sens parallèle aux couches. La distribution du champ sera donc modifiée aux endroits où le champ n'est pas perpendiculaire aux couches du matériau.

Des mesures à température variable ont été effectuées. Dans le matériau sec, la domination d'un seul type de relaxation présente un pic de perte qui se décale vers les hautes fréquences avec l'augmentation de la température. Une fois que le matériau est humide, ce type de relaxation devient négligeable devant les autres phénomènes de relaxation, et les pertes et la permittivité augmentent dans toute la gamme de fréquence. A 50Hz, l'influence de la température est nette à la température la plus élevée (80°C) et ceci suggère que la distribution du champ pourrait être modifiée par un gradient de température dans le matériau. Toutefois, l'effet de la température reste faible en comparaison de celui observé quand nous faisons varier la teneur en eau.

Le comportement dipolaire du matériau humide a été observé à travers des mesures du courant en DC. Ces mesures montrent la complexité des phénomènes qui ont lieu au sein du matériau humide, impliquant des mécanismes de relaxation et de conduction. Les phénomènes de relaxation sont non négligeables surtout pour les échantillons peu humides. La réponse diélectrique du matériau suit bien la loi « universelle » qui est applicable pour la plupart des solides diélectriques.

Ces mesures permettent de proposer des méthodes de diagnostic basées sur la spectroscopie diélectrique ou sur la mesure de courant de conduction. Cette deuxième méthode, plus simple à mettre en œuvre, a été validée en laboratoire, mais a donné des résultats assez peu satisfaisant sur une machine réelle. Une troisième méthode, plus efficace, sera décrite dans le chapitre suivant.

Références bibliographiques

[1] Kuffel E., "High voltage engineering Fundamental", Edition Newnes, 2003

[2] Kutil A. et Fröhlich K., "Partial Discharge Phenomena in Composite Insulation Materials", Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Virginia Beach VA USA, October 22-25, pp.343-346, 1995

[3] O'Dwyer J. J., "The theory of Electrical Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics", Clarendon Press Oxford, 1973

[4] Blythe A. R., "Electrical Properties of Polymers", Cambridge University Press, 1979

[5] Hippel V., « Les diélectriques et leurs applications », Dunord Paris, 1961

[6] Jonscher A. K., "Dielectric Relaxation in Solids", Chelsea Dielectric Press, 1983

[7] Seifert J. M et al., "The Ageing of Composite Insulation Material- New possibilities to detect and to classify ageing phenomena with dielectric diagnostic tools", International Symposium on Electrical Insulation, Washington DC USA, pp.373-377, 1998

[8] Maxwell J. C., "A treatise on electricity and Magnetism", Dover Press NewYork, Vol.1, 1954

[9] Van Beek L. K. H., "Dielectric Behaviour of Heterogeneous Systems", progress in Dielectric, Vol. 7, pp.69-114, Edition London Heywood Books, 1967

[10] Jonscher A. K. et Ramdeen T., "Transient Dielectric Response of Conduction on Humid Mica", IEEE Transaction on Electrical Insulation, Vol. 22(35), pp.35-39, 1987

[11] Owede F. et Jonscher A.K., "Time and Frequency Dependent Surface Transport on Humid Insulators", J. Electrochem.Soc., Vol. 135(7), pp.1757-1765, 1988

[12] Chaudhry M. A. et Jonscher A. K., « The Dielectric Properties of Mica Paper in Variable Temperature and Humidity", J. Mater.Sci, Vol. 20, pp.3581-3589, 1985

[13] Jonscher A. K., « A New Model of Dielectric Loss », Colloid and Polymer Sci, Vol.253, pp.231-250, 1975

[14] Dissado L. A., et Hill R. M., « Anomalous Low Frequency Dispersion », J. Chem.Soc. Faraday Trans 2, Vol. 80, pp.291-319, 1984

[15] Adamec V. et Calderwood J. H., « Electrode Polarization in Polymeric Dielectrics »,IEEE Transaction on Electrical Insulation, Vol. 24(2), pp.205-213, 1989

[16] Coelho R., "Physics of dielectrics for the engineer", Elsevier Amsterdam 1979

[17] Frood D. G. et Gallagher T.J., « Space Charge Dielectric of Water and Aqueous Electrolytes », Journal of Molecular Liquids, Vol. 69, pp.183-200, 1996

[18] Schrijver C. et al., « A chemical Approach to the Dielectric Aging of Fibre-Reinforced Polymer Insulation », European Transactions on Electrical Power, Vol. 7(2), pp.99-105, 1997 [19] Garton C. G., « Dielectric Loss in Thin Films of Insulating Liquids », J.IEE, vol. 88, p.103-121, 1941

[20] Segui Y., « Courant de conduction », Diélectriques, Techniques de l'Ingénieur Vol.D-2301, pp.1-12, 2000

[21] Fukuda A. et al., « The Influence of Water Absorption on Dielectrique Properties of Cycloaliphatic Epoxy Resin », International Conference on Properties and Application of Dielectric Materials, Seoul, Korea, pp.58-61, 1997

[22] Robert Fournié et Roland Coelho, « Diélectriques : Bases théoriques », Techniques de l'Ingénieur Vol. D2-300, pp.1-18, 2000

[23] Ildsatd et al., "Relation between Return Voltage and Other Methods for Measurements of Dielectric Response", International Symposium on Electrical Insulation, Pittsburgh, USA, pp.25-28, 1994

[24] Gonon P. et al., « Influence of High Levels of Water Absorption on the Resistivity and Dielectric Permittivity of Epoxy Composites », Testing Polymer, Vol. 24(6), pp.799-805, 2005

[25] Efros A.L., Shklovskii B.I., « Critical Behaviour of Conductivity and Dielectric Constant near the Metal non Metal Transition Threshold », Physics Status Solidi B 76, pp.475-485, 1976

[26] Douglas H. McQueen et al., "Multiple threshold percolation in polymer/filler composites", Journal of Physics D: Applied Physics, Vol.37, pp.2160-2169, 2004

[27] Yi Song et al., " Experimental study of the three-dimensional ac conductivity and dielectric constant of a conductor-insulator composite near the percolation threshold", Physcial Review B, Vol.33(2), pp.904-908, 1986

[28] Lesaint O. et al., "Rapport intermédiaire LEMD-EDF", Février 2004
Chapitre IV

Modélisation de la répartition du champ en présence

de diffusion d'eau

Dans le chapitre précédent, nous avons montré que le vieillissement hydrothermique d'échantillons de laboratoire provoque de sévères conséquences : augmentation considérable des pertes diélectriques, chute de tension de claquage. En présence d'une fuite d'eau dans une barre d'alternateur la situation peut être sensiblement différente car il existe dans le matériau un gradient de concentration d'eau : le cœur de la barre est humide et l'extérieur est séché en permanence par de l'hydrogène sec. Par conséquent, les propriétés diélectriques ne sont plus homogènes et la répartition du champ peut devenir non uniforme.

L'objectif de ce chapitre est de modéliser ce phénomène afin de mieux comprendre le comportement d'une barre humide. Tout d'abord, nous calculerons le profil de la concentration d'eau dans des conditions proches de la réalité. A partir de ce profil, nous calculerons la distribution du champ dans le matériau à l'aide des données diélectriques mesurées précédemment.

IV.1. Calcul du profil de concentration d'eau au cours du temps

Les mesures de sorption d'eau dans le chapitre II nous permettent de déterminer les mécanismes de diffusion dans le matériau et de connaître la masse absorbée en fonction du temps. L'eau diffuse dans le matériau dans toutes les directions et la loi de Fick ne nous permet que de définir la masse totale absorbée mais pas la distribution spatiale de l'eau en fonction du temps d'imprégnation. Lors d'une fuite accidentelle, le problème est différent : l'eau diffuse dans l'isolation dans une direction unique à partir des conducteurs en cuivre vers l'extérieur de la barre où il existe en permanence un flux d'hydrogène sec (figure IV.1). Si le comportement du matériau est « fickien », la concentration d'eau en fonction du temps est déduite grâce à l'équation II.3. La résolution de cette équation nécessite quelques hypothèses telles que les conditions initiales et aux limites. Nous avons considéré les conditions suivantes qui correspondent au cas pratique :

- 1. Du côté cuivre, l'eau est présente en permanence. La concentration d'eau dans le matériau de ce côté correspond à la saturation C_{∞}
- La surface extérieure dans l'hydrogène sec reste sèche en permanence, ceci rend la concentration d'eau nulle de ce côté.
- Le côté à la haute tension est choisi comme l'origine dans l'axe spatial. L'épaisseur de l'isolation qui se prolonge sur cet axe est de 4mm (figure IV.1).
- 4. Le matériau est entièrement sec avant d'être imprégné par l'eau, la concentration est partout nulle à l'origine du temps.

5. Etant donné que la concentration d'eau est proportionnelle au pourcentage en masse de l'eau dans le matériau, nous pouvons remplacer les valeurs C(x,t) par les valeurs m(x,t) dans l'équation II.3 pour calculer le pourcentage d'eau en masse, où m représente l'augmentation de masse provenant de la diffusion d'eau (m exprimé en %). L'équation II.3 est alors :

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = \mathbf{D} \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial x^2} \tag{IV.1}$$

Avec les conditions initiales et aux limites suivantes :

$$\begin{cases} m(0,t) = m_{\infty} \\ m(l,t) = 0 \\ m(x,0) = 0 \end{cases}$$
 (IV.2)



Figure IV.1 : Représentation agrandie du problème de diffusion d'eau dans une barre réelle

Conformément aux résultats du chapitre II, nous allons résoudre l'équation IV.1 en distinguant deux cas :

<u> 1^{er} cas</u> : La diffusion de l'eau dans le matériau a lieu dans deux phases : phase de volume libre et celle de région polaire suivant un comportement fickien (ceci est toujours observé dans des échantillons de 1mm). Ce processus de diffusion n'engendre pas de dommage macroscopique (prise en poids à la saturation m_{∞} aux alentours de 1,4% quand il n'y a pas de dommages). L'équation IV.1 est résolue séparément pour chacune des deux phases, la distribution globale de l'eau est la somme de la distribution dans ces deux phases. Les conditions IV.2 seront appliquées pour chaque phase, avec m_{∞} correspondant à m₁ + m₂. Rappelons que m₁ est la prise en poids à saturation de la phase 1 (volume libre), m₂ est celle de phase 2 (région polaire) et que la somme m_{∞}=m₁+m₂ reste constante avec la température (aux alentours de 1,4%, voir chapitre 2). L'évolution de m₁ en fonction de la température peut être estimée grâce à la théorie du volume libre [1], et m₂ est la différence entre m_{∞} et m₁. Les résultats donnés dans le tableau II.2 nous permettent de décrire la relation entre m_1 et la température selon la relation suivante :

$$m_1(\%) = -2,46636 + 0,01026T, T(^{\circ}C)$$
 (IV.3)

L'équation IV.1 est réécrite comme suit :

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = \mathbf{D}_1 \frac{\partial^2 \mathbf{M}_1}{\partial x^2} + \mathbf{D}_2 \frac{\partial^2 \mathbf{M}_2}{\partial x^2}$$
(IV.4)

où M1 et M2 sont les pourcentages d'eau dans chaque phase du matériau.

En régime stationnaire de diffusion, la partie gauche de l'équation IV.1 est égale à zéro et IV.1 devient :

$$D\frac{\partial^2 M}{\partial x^2} = 0 \tag{IV.5}$$

En utilisant les conditions IV.2, la solution de l'équation IV.5 est alors :

$$M(x) = -\frac{M_{\infty}}{l}x + M_{\infty}$$
 (IV.6)

En régime transitoire, la solution de l'équation IV.1 est [3] :

$$M(x, t) = M(x) + \sum_{n=1}^{\infty} \alpha_n \sin \frac{n\pi x}{l} \exp \left(-D \frac{n^2 \pi^2 t}{l^2}\right)$$
(IV.7)

Avec :

$$\alpha_n = \frac{2}{l} \int_0^l - M(x) \sin \frac{n\pi x}{l} dx$$
(IV.8)

En substituant la formule de M(x) de IV.6 dans IV.8, nous obtenons :

$$\alpha_{\rm n} = -\frac{2M_{\infty}}{n\pi} \tag{IV.9}$$

La solution finale de l'équation IV.1 est alors :

$$M(x,t) = -\frac{M_{\infty}}{l}x + M_{\infty} - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2M_{\infty}}{n\pi} \sin \frac{n\pi x}{l} \exp\left(-D\frac{n^2 \pi^2 t}{l^2}\right) \quad (IV.10)$$

La série dans l'équation IV.10 disparaît lorsque t tend à l'infini, ceci donne la solution en régime stationnaire de M(x,t). La distribution de l'eau en fonction du temps dans le matériau est donc bornée par la réponse en régime stationnaire M(x). Dans notre cas, la solution est la somme de M₁(x,t) et M₂(x,t) qui ont la même forme que l'équation IV.10 dans laquelle les coefficients M_{∞} et D varient pour chaque phase.

T(°C)	$D_1(mm^2.h^{-1})$	$D_2(mm^2.h^{-1})$	m ₁ (%)	$m_2(\%)$
25	2,58.10-5	3,05.10-4	0,59112	0,90888
60	2.10 ⁻⁴	6,55.10 ⁻³	0,95002	0,54978

Tableau IV.1 : Les coefficients de l'équation de Fick des deux phases, extrait du chapitreII, sont calculés selon la théorie du volume libre(équation IV.3)

 $2^{\frac{d}{cas}}$: Dans le cas contraire, des fissures dans la matrice et la rupture de fibres interviennent dans le processus de diffusion. Ce phénomène est observé pour les épaisseurs les plus grandes (2mm et 4mm) et se manifeste par une augmentation anormale de la teneur en eau à la saturation (m_∞ $\approx 2,4\%$). Le modèle précédent n'est plus applicable et nous devons trouver une autre loi afin de décrire la diffusion à cette épaisseur (4mm) qui correspond à l'épaisseur de l'isolation dans la pratique. Le travail précédent [4] sur les échantillons de 4mm a nous permis de confirmer qu'avant la modification structurale qui est associée à l'augmentation anormale de m_∞, la loi de Fick décrit assez bien la diffusion. Pour résoudre le problème, nous supposerons que la valeur m_∞ est la même que celle trouvée avec l'échantillon de 4mm dans l'eau à 90°C (2,4%) et que le comportement est « fickien ». Ces considérations nous permettent de résoudre l'équation IV.1 comme dans le premier cas, sachant qu'un seul mécanisme intervient avec un coefficient de diffusion qui est déduit de [4] et une prise en poids à la saturation de 2,4%. Les valeurs de D et m_∞ sont présentées sur le tableau IV.2

T(°C)	$D(mm^2.h^{-1})$	m∞(%)
25	6.10 ⁻⁵	2,4
60	3,27.10-4	2,4

Tableau IV.2 : Les coefficients de l'équation de Fick dans le cas de dommages structuraux engendrant une augmentation anormale de m_{∞}

IV.1.1. Calcul à la température ambiante

La plupart des mesures électriques dans cette étude ont été réalisées à température ambiante. La saturation à la température ambiante étant très longue à obtenir pour une épaisseur de quelques millimètres (plusieurs décennies [2]), nous sommes obligés d'utiliser les données obtenues avec l'imprégnation accélérée pour extrapoler les paramètres de diffusion à la température ambiante, en considérant que la saturation (m_{∞}) ne varie pas avec la température.

IV.1.1.1. Diffusion dans le matériau sans dommages

En utilisant la formule IV.10 et les paramètres du tableau IV.1, nous pouvons calculer le profil de concentration d'eau dans le matériau à tout moment après l'apparition d'une fuite. Nous constatons qu'à la température ambiante, le temps nécessaire pour arriver à l'équilibre est très long pour une épaisseur de 4mm. Le profil à l'équilibre est obtenu après environ 120 000h (\approx 15 ans), ce résultat confirme la nécessité d'utiliser une méthode d'imprégnation accélérée dans les expériences. Le profil d'eau après 1000h, 10 000h et 120 000h est présenté sur la figure IV.2. Ce profil devient linéaire lorsque le temps d'imprégnation augmente, ce résultat est en accord avec l'équation IV.10.



Figure IV.2 : Profil de concentration d'eau calculé après 1 000h, 10 000h et 120 000h à la température ambiante selon le modèle MP (deux phases, pas de dommages structuraux)

IV.1.1.2. Diffusion dans le matériau avec dommages

La valeur de m_{∞} est supposée de 2,4%, le coefficient de diffusion extrapolé à partir de [4] est de 6.10⁻⁵ mm.h⁻¹. La solution IV.10 donne le profil de concentration d'eau calculé après des temps similaires au cas précédent sur la figure IV.3. Nous constatons qu'il y a peu différence de temps pour atteindre l'équilibre (120 000h). Par contre, le pourcentage d'eau absorbée est plus petit dans ce cas pour des temps intermédiaires. Ceci est facilement compréhensible car le coefficient de diffusion est plus petit dans ce cas.



Figure IV.3 : Profil de concentration d'eau calculé après 1000h, 10 000h et 120 000h à la température ambiante selon un seul modèle fickien (dommages structuraux)

IV.1.2. Calcul à la température de service (60°C)

En fonctionnement normal dans un alternateur, la chaleur provenant du courant circulant dans les barres est importante. La température de l'eau enregistrée en sortie des barres est aux alentours de 60°C [5]. A cette température, le processus de diffusion est accéléré. Nous utilisons la même procédure que dans la partie IV.1.1 afin de calculer le profil de concentration d'eau à la température de service (60°C) pour trois temps : 100h, 1 000h et 20 000h.

IV.1.2.1. Diffusion dans le matériau sans dommages



Figure IV.4: Profil de concentration d'eau calculé après 100h, 1 000h et 20 000h à la température de service (60°C) selon le modèle MP (deux phases, pas de dommages)

A cette température, l'équilibre est atteint nettement plus rapidement que dans le cas précédent. Le profil de concentration d'eau devient linéaire après environ 20 000h (\approx 2 ans). Le résultat est montré sur la figure IV.4

IV.1.2.2. Diffusion dans le matériau avec dommages

Toujours à cause de la différence du coefficient de diffusion, le pourcentage de l'eau absorbée dans ce cas est légèrement inférieur au cas des échantillons dont la structure reste intacte.



Figure IV.5: Profil de concentration d'eau calculé après 100h, 1 000h et 20 000h à la température de service (60°C) selon un seul mécanisme fickien (dommages structuraux)

IV.2. Evolution des propriétés diélectriques

Dans le chapitre III, l'évolution des propriétés diélectriques du matériau en fonction de la quantité d'eau absorbée a été mesurée par spectroscopie. Rappelons que dans ces mesures, nous avons utilisé le modèle d'impédance pour lequel le matériau est considéré comme un circuit parallèle (R-C). Chaque échantillon mesuré représente globalement une résistance équivalente R (ou conductance G) connectée en parallèle avec une capacité équivalente C. Les grandeurs caractéristiques (ϵ ', ϵ '' et tan δ) sont déduites directement à partir de ces valeurs équivalentes. A chaque fréquence, nous obtenons une résistivité et une permittivité « équivalente » qui sont liées aux caractéristiques du circuit représentatif selon ces formules :

$$\rho_{\text{équivalente}}(\omega) = \frac{1}{G_{\text{équivalente}}(\omega)} \frac{A}{l} = R_{\text{équivalente}}(\omega) \frac{S}{l} = \frac{1}{\tan \delta \omega C_{\text{équivalente}}} \cdot \frac{A}{l} \quad (\text{IV.11})$$

$$\varepsilon_{\text{équivalente}}(\omega) = C_{\text{équivalente}}(\omega) \frac{1}{A\varepsilon_0}$$
 (IV.12)

Nous pouvons reconnaître dans ces formules $C_{équivalente}$ qui correspond à la partie réelle de la capacité complexe des formules III.2-III.4, la permittivité équivalente $\varepsilon_{équivalente}$ est ε ' qui est discuté dans le chapitre III. La résistivité équivalente est facilement obtenue grâce à la formule IV.11 et les données présentées dans le chapitre précédent.



IV.2.1. A la température ambiante

Figure IV.6 : Permittivité équivalente à plusieurs fréquences (■ :1000Hz; ▲ : 50Hz ;
* : 10Hz ; ► : 1Hz ; • : 0,1Hz ; ▼ : 0,01 ; ◄ : 0,001Hz) en fonction de la teneur en eau (température ambiante)

La figure IV.6 montre l'évolution de la permittivité en fonction de la teneur en eau à plusieurs fréquences (de 0,001 à 1000Hz) à température ambiante. Les données expérimentales sont exprimées par des symboles et elles sont approximées par des fonctions polynomiales (lignes). Bien que cette approximation n'ait pas de signification physique, elle nous donne une description empirique qui sera utile pour la modélisation. Nous observons bien l'effet de la fréquence, en particulier en dessous de 10Hz où une chute d'une décade dans la fréquence provoque une augmentation d'une décade dans la permittivité.

Quant à la résistivité, sa variation en fonction de la teneur en eau peut être approximée par la théorie de percolation. Les résultats du chapitre III nous permettent de « fitter » l'évolution de la résistivité en fonction de la teneur en eau par le modèle de percolation (formule III.22-chapitre III) à chaque fréquence. Le tableau IV.3 montre les paramètres d'ajustement pour 7 valeurs de fréquence.

f(Hz)	1000	50	10	1	0,1	0,01	0,001
$\rho(\Omega.mm)$	6,7.10 ¹⁷	5,6.10 ¹⁵	1,5.10 ¹³	7,5.10 ¹⁰	17,4.10 ⁹	6,8.10 ⁹	4,4.10 ⁹
$X_{c}(\%)$	-2,7	-1,7	-2,7	-0,95	-0,32	-0,1	-0,016
t	14,28	12,6	9,82	6,69	4,93	4,2	4,07

Tableau IV.3 : Paramètres d'ajustement du modèle de percolation



Figure IV.7 : Résistivité équivalente à 1 000; 50 et 10Hz en fonction de la teneur en eau (température ambiante) et courbes ajustées avec le modèle de percolation



Figure IV.8 : Résistivité équivalente à 1 ; 0,1 ; 0,01 et 0,001Hz en fonction de la teneur en eau (température ambiante) et courbes ajustées avec le modèle de percolation

IV.2.2. A la température de service

Nous allons considérer uniquement l'évolution des propriétés à la fréquence de 50Hz et à la température de service (60°C). Avec la même approche utilisée que dans la partie IV.2.1, nous obtenons les figures IV.9 et IV.10. Pour comparaison, les caractéristiques à la température ambiante sont tracées sur la même figure.



Figure IV.9 : L'influence de la température de service (60°C) sur l'évolution de la permittivité équivalente en fonction de la teneur en eau



Figure IV.10 : Influence de la température sur l'évolution de la résistivité équivalente en fonction de la teneur en eau (modèle de percolation)

IV.3. Calcul de la distribution du champ

Dans la partie IV.1, le profil de concentration d'eau a été déterminé et l'évolution des propriétés diélectriques du matériau est quantifiée par les figures IV.6-IV.10. A partir de ces données, nous pouvons déterminer l'évolution des propriétés diélectriques locales de l'isolation d'une barre réelle en fonction du temps et en fonction de la position une fois qu'une fuite accidentelle s'est produite. Le changement des propriétés diélectriques provoque une modification importante de la distribution du champ. Le but de cette partie est de calculer cette distribution du champ dans matériau.

Pour chaque teneur en eau, nous pouvons en chaque point définir une permittivité équivalente et une résistivité équivalente correspondant aux courbes IV.6-IV.10. Dans le cas où la concentration d'eau varie en fonction de la position (figure IV.2-IV.5) le matériau est décrit comme une mise en série de n éléments R-C en parallèle (figure IV.11). Chaque élément a une valeur qui dépend de sa position et de la concentration locale en eau.



Figure IV.11 : Schéma électrique équivalent du matériau

Dans cette figure :

 V_0 : Potentiel appliqué du côté conducteur en cuivre (à x=0), ce potentiel est la tension nominale de fonctionnement de l'alternateur.

V_n: Potentiel du côté extérieur de l'isolant à la masse (à x=4mm).

Si le matériau est divisé en n éléments, la longueur de chaque élément est $\Delta l=l/n$ (mm). Le potentiel aux bornes du i^e élément est :

$$V_i = \frac{V_0}{Z_{\text{total}}} \cdot \sum_{j=1}^{i} Z_j$$
 (IV.13)

Avec :

$$Z_{i} = \frac{1}{\sqrt{\frac{1}{R_{i}^{2}} + (\omega C_{i})^{2}}}$$
 (IV.14)

$$Z_{\text{total}} = \sum_{i=1}^{n} Z_i \qquad (IV.15)$$

Où :

- Z_i : Impédance de chaque élément
- Z_{total}: Impédance totale de l'isolant

La résistance Ri et la capacité Ci de chaque élément sont liées à la résistivité et à la permittivité par les formules :

$$R_i = \rho_i \frac{\Delta l}{A}$$
 (IV.16)

$$C_{i} = \varepsilon_{0}\varepsilon_{i} \frac{A}{\Delta l}$$
(IV.17)

En remplaçant IV.16 et IV.17 dans IV.14, nous obtenons :

$$Z_{i} = \frac{\Delta l}{A} \frac{1}{\sqrt{\frac{1}{\rho_{i}^{2}} + (\omega \varepsilon_{0} \varepsilon_{i})^{2}}}$$
(IV.18)

Où A est la surface de l'échantillon mesuré.

Cette formule, en combinaison avec IV.13, nous permet de définir le potentiel en chaque position en utilisant les résultats de la partie IV.1 et IV.2.

Si le nombre d'éléments devient grand, leur dimension devient assez petite pour que nous puissions supposer que le champ dans chaque élément est uniforme. La valeur du champ est déduite à partir des valeurs de tension aux bornes de chaque élément :

$$E_{i} = -\text{gradV} = \frac{V_{i} - V_{i-1}}{\Delta l}$$
(IV.19)

IV.3.1. Résultats à la température de service (60°C)

Nous avons montré que la spectroscopie diélectrique haute tension ne révèle aucune influence notable de la tension sur la réponse diélectrique dans toute la gamme de fréquence (Figures III.36 - III.41) quelque soit la teneur en eau. Nous pouvons donc utiliser les propriétés diélectriques à 10V/mm des figures IV.9 et IV.10 pour calculer la distribution du champ.

En utilisant le principe de calcul décrit plus haut, nous obtenons la distribution du potentiel et du champ dans des conditions réelles d'utilisation pour les deux mécanismes de diffusion : sans et avec dommages. Le potentiel appliqué au conducteur est $V_0=13kV$, l'épaisseur de l=4mm est divisée en 1000 éléments. Les résultats sont montrés sur les figures IV.12-IV.15.

Dans le premier cas sans dommages, nous constatons qu'à t=0 (le matériau est sec), le potentiel est distribué linéairement, et le champ est uniforme dans le matériau : E=13/4=3,25kV/mm. Quand le matériau absorbe de l'eau, le potentiel est repoussé vers les couches extérieures et le champ est renforcé sur ces couches (4kV/mm à t=100h). Cette tendance s'accentue au cours du temps. Dans le cas extrême (t=20 000h) correspondant à l'état stationnaire de la diffusion, les deux millimètres d'isolation extérieurs subissent presque tout le potentiel appliqué (\approx 9,5kV) et le champ dans cette zone est multiplié par trois par rapport au matériau sec (jusqu'à 9kV/mm).



Figure IV.12 : Répartition du potentiel dans le matériau à différents instants dans des conditions de service (60°C), la diffusion ne causant pas de dommages



Figure IV.13 : Répartition du champ dans le matériau à différents instants à la température de service (60°C), la diffusion ne causant pas de dommages

Dans le deuxième cas où des dommages se sont produits et la teneur en eau à la saturation s'élève à 2,4%, les résultats son comparables. En régime stationnaire pour la diffusion d'eau (20 000h), le potentiel sur les 2mm extérieurs est légèrement augmenté par rapport au premier cas, tandis que le champ est renforcé jusqu'à 13kV/mm.



Figure IV.14: Répartition du potentiel dans le matériau à différents instants à la température de service (60°C) avec apparition de dommages



Figure IV.15 : Répartition du champ dans le matériau à différents instants à la température de service (60°C) avec apparition de dommages

IV.3.2. Résultats à la température ambiante

Afin d'évaluer l'effet de la température sur la distribution du champ dans le matériau, le même calcul a été fait en utilisant les propriétés diélectriques mesurées à la température ambiante et le profil de concentration d'eau qui est provoqué par la diffusion à la température de service (60°C). Ces conditions sont représentatives d'un essai mené à froid sur une machine à l'arrêt. Les résultats sont montrés dans les figures IV.16 et IV.17.



Figure IV.16 : Répartition du champ dans le matériau à différents instants à la température ambiante, la diffusion ne causant pas de dommages



Figure IV.17 : Répartition du champ dans le matériau à différents instants à la température ambiante avec apparition de dommages

Nous constatons que la réduction de la température diminue significativement le renforcement du champ sur les couches extérieures. En régime stationnaire le champ maximum atteint est de 7kV/ mm par rapport à 9,5kV/mm à la température de service pour la diffusion sans dommages. Pour la diffusion avec dommages cette réduction est environ de 4kV/mm (9kV/mm par rapport à 13kV/mm). Cette observation montre l'effet néfaste de la température qui accentue la distorsion du champ.

IV.3.3. Effet de la fréquence

La grande sensibilité des propriétés diélectriques avec la fréquence suggère qu'il est intéressant de calculer la répartition du potentiel à différentes fréquences (en particulier à basse fréquence), afin de trouver des conditions optimales de diagnostic. En effet, nous verrons plus loin qu'il est techniquement possible dans certaines barres de mesurer le potentiel du milieu de l'isolation. Pour cela, nous utilisons les données mesurées à la température ambiante car le diagnostic se fait toujours à la température ambiante. Les fréquences sont respectivement 1000 ; 50 ; 10 ; 0,1 ; 0,01 et 0,001Hz pour lesquelles les propriétés diélectriques en fonction de la teneur en eau ont été présentées dans la partie IV.2.1. Les temps de diffusion ont été choisis de 1000 ; 10 000 et 120 000h avec les profils de concentration présentées sur les figures IV.2 et IV.3. Le potentiel appliqué au conducteur est de 40V, valeur que nous avons utilisée pour les mesures de spectroscopie diélectrique.

IV.3.3.1. Le cas où la diffusion d'eau ne cause pas de dommages.

L'effet de la fréquence sur la répartition du potentiel est présenté sur les figures IV.18-IV.20. Nous constatons qu'à 1000Hz la distribution du potentiel reste peu sensible à la teneur en eau : le potentiel à 2mm augmente de 7V par rapport au cas sec (20V) pour l'état stationnaire de diffusion (\approx 120 000h) dans la figure IV.20. A 50Hz et 10Hz, la sensibilité est meilleure qu'à 1000Hz, mais il reste faible dans le cas où la quantité d'eau absorbée est petite (à t=1000h) : le potentiel à 2mm est de 25V au lieu de 20V. A des fréquences de 0,01Hz et 0,001Hz le potentiel à 2mm peut atteindre environ 90% du potentiel appliqué, même à des teneurs en eau faibles (à t=1000h). A une teneur en eau plus élevée (à t=10 000h ou 120 000h), à 2mm nous retrouvons la totalité du potentiel appliqué (Figures IV.19 et IV.20).



IV.18 : Répartition du potentiel à 1000h, diffusion sans dommages



Figure IV.19 : Répartition du potentiel après 10 000h, diffusion sans dommages



Figure IV.20 : Répartition du potentiel après 120 000h, diffusion sans dommages

IV.3.3.2. Le cas où la diffusion d'eau engendre des dommages

Nous avons également calculé la répartition du potentiel pour le cas où la teneur en eau à la saturation est plus élevée (2,4%), situation provoquée par des dommages dans la structure du matériau. Les résultats sont qualitativement similaires avec une distorsion du potentiel plus faible à 1000h en raison d'une diffusion d'eau moins rapide.



Figure IV.21 : Répartition du potentiel après 1000h, diffusion avec des dommages



Figure IV.22 : Répartition du potentiel après 10 000h, diffusion avec des dommages



Figure IV.23 : Répartition du potentiel après 120 000h, diffusion avec des dommages

IV.3.4. Proposition d'une méthode de diagnostic utilisant une sonde de potentiel

Les calculs du potentiel effectués dans la partie précédente ont montré une forte chute de potentiel sur les deux millimètres extérieurs. A des fréquences très basses (0,01 et 0,001Hz), cette zone subit presque la totalité du potentiel appliqué. Ces résultats suggèrent que le potentiel du milieu de l'isolation peut donner une image quantitative de l'état du matériau. Dans la zone de développante de la barre, il existe une électrode interne flottante qui a pour but d'améliorer la distribution du champ (chapitre I) et qui est localisée au milieu de l'isolation (Figure IV.24).

A l'aide d'une sonde de potentiel sans contact (sonde vibrante), il est possible de mesurer son potentiel. Une telle méthode de diagnostic a été également proposé très récemment par des chercheurs japonais [6]. Dans cette méthode, une tension à basse fréquence est appliquée au cœur de la barre, la peinture conductrice est connectée à la masse. Dans le cas sec, le potentiel de l'électrode interne est la moitié du potentiel appliqué au cœur de la barre. En présence d'eau, le potentiel mesuré par la sonde sera plus élevé et dans les cas les plus défavorables, il sera égal à la quasi-totalité du potentiel appliqué. Cette méthode simple a été testée par les services de la DTG sur un grand nombre de barres sur des machines réelles avec une fréquence d'essais de 30Hz. Les résultats montrent l'efficacité de cette méthode : conformément à nos calculs, le potentiel mesuré sur des barres humides peut dépasser 90% de la tension appliquée.



Figure IV.24 : Principe de la méthode de détection d'eau en utilisant une sonde de potentiel, appliquée sur la zone de développante

IV.3.5. Illustration du danger d'appliquer une haute tension à basse fréquence

La répartition du champ dans l'isolation à deux fréquences 50Hz et 0,001Hz a été calculée pour montrer l'effet de la fréquence (Figure IV.25-IV.26) pour une même tension appliquée de 13kV. A l'état stationnaire (120 000h), le champ présent sur les couches extérieures est extrêmement élevé. Le champ peut dépasser 100kV/mm pour la fréquence de 0,001Hz. Ces résultats montrent que le claquage peut survenir lorsqu'on applique un champ continu sur une barre humide, bien que cette barre tienne sans problème la même tension à 50Hz.



Figure IV.25 : Influence de la fréquence sur la distribution du champ à 120 000h pour la diffusion sans dommages



Figure IV.26 : Influence de la fréquence sur la distribution du champ à 120 000h pour la diffusion avec des dommages

IV.4.Conclusion

Les calculs qui ont été faits dans ce chapitre nous permettent de préciser le profil de la concentration d'eau en fonction du temps et en fonction de la position à partir d'un point de fuite. Lorsque la température augmente, le processus de diffusion est fortement accéléré. La diffusion à la température de service (60°C) peut atteindre l'état stationnaire en un temps dix fois moindre qu'à la température ambiante.

La répartition du champ en cas de diffusion d'eau a été calculée en considérant le matériau comme la mise en série des éléments R-C en parallèle. Les résultats ont montré que la diffusion d'eau entraîne un renforcement important du champ sur les couches extérieures peu humides (côté masse), et avec l'effet synergique de la température la valeur du champ à cet endroit peut atteindre jusqu'à 3 ou 4 fois la valeur de fonctionnement normal. Malgré ce renforcement, le champ (environ 10kV/mm) reste supérieur au champ de claquage à court terme, mais se rapproche de la valeur de claquage à long terme (voir figure III.7). La fiabilité est par conséquent dégradée. Le champ dans la zone humide (la plus fragile) est fortement affaibli (environ 1kV/mm), ce qui est favorable. Cet effet « auto-stabilisant » explique très probablement que des barres humides peuvent supporter longtemps la tension sans claquage, mais avec une fiabilité dégradée.

Les potentiels calculés dans la zone où se trouve l'électrode interne montrent une grande sensibilité à la quantité d'eau absorbée par le matériau, en particulier à basses fréquences. Ces calculs nous permettent de développer une nouvelle méthode de diagnostic dont l'efficacité a été validée sur les machines réelles. Et enfin, le calcul de la répartition du champ à basse fréquence proche du champ continu a montré le danger d'une application d'un champ continu sur une barre humide.

Références bibliographiques

[1] Chatain M., « Comportements physique et thermomécanique des plastiques », Technique de l'Ingénieur, A 3 110, pp.1-57, 2000

[2] Tanaka T. et al., « Basic Study on Outdoor Insulators of Organic Materials », IEEE Trans. Electr. Insul, Vol.13 (3), pp.184-193, 1978

[3] Carslaw H. S. et Jaeger J. C., « Conduction of Heat in Solids », Oxford Clarendon Press, 1959

[4] Gonon P. et al., "Effect of Hydrothermal Aging on the Dielectric Properties of Epoxy Composites", 7th International Conference on Properties and Applications of Dielectric Materials (ICPADM), June 1-5, Nagoya Japan, pp.936-939, 2003

[5] Duffeau F. et al., "Palier P'4 1300MW- Circuit GRH Guide d'analyse des paramètres alternateur", Rapport EDF-R&D N° HR-15/03/046/A, 2003

[6] Inoue Y. et al., « Advanced Methods for Detecting Wet Bars in Water Cooled Stator Windings of Turbine Generators », International Conference on Electric Generator Predictive Maintenance and Refurbishment (EPRI), January 20-21, Florida USA, pp. 88-103, 2003

Conclusion générale

Dans ce travail nous nous sommes intéressés aux effets d'une contrainte qui conduit à une dégradation d'un matériau composite utilisé pour isoler les barres des alternateurs au cours de leur utilisation : la pollution par de l'eau. Les expériences qui simulent ce vieillissement ont mis en évidence deux mécanismes d'absorption de l'eau dans le matériau : un mécanisme de diffusion provoqué par les volumes libres et l'autre par les groupes polaires dans le réseau macromoléculaire. Pour les échantillons les plus épais (4mm) correspondant à des épaisseurs réelles, les effets de gonflement au sein du matériau conduisent également à des dommages macroscopiques.

Les mesures du champ de claquage nous ont permis de montrer l'influence très importante du vieillissement hydrothermique sur la dégradation de la tension d'endurance. Ceci met en évidence la nécessité de posséder une méthode de diagnostic capable de détecter ce type de vieillissement avant d'arriver au claquage.

Les mesures de spectroscopie diélectrique réalisées à basse tension ont été effectuées avec deux configurations du champ : le champ perpendiculaire et parallèle aux couches du matériau. Ces mesures ont montré une grande sensibilité des propriétés diélectriques au vieillissement hydrothermique, en particulier à basse fréquence. La spectroscopie diélectrique est apparue comme une méthode très efficace de diagnostic de l'état du matériau. Elle combine plusieurs avantages: grande sensibilité, rapidité, simplicité de mesure. Grâce à ces mesures, le phénomène LFD (dispersion à basse fréquence) a été identifié comme la contribution dominante à la dégradation des propriétés diélectriques du matériau, en plus des phénomènes tels que: polarisation interfaciale, polarisation d'électrode, conduction... La comparaison entre les propriétés diélectriques des deux configurations du champ nous a permis d'imaginer l'existence et l'arrangement des « clusters » qui sont formés pendant le processus du vieillissement.

Les résultats de spectroscopie diélectrique sous champ élevé n'ont pratiquement pas montré d'influence du champ sur l'évolution des propriétés diélectriques, sauf l'effet Garton qui apparaît à basses fréquences. A la fréquence de service (50Hz), les propriétés diélectriques ont montré leur stabilité jusqu'à 1kV/mm quelque soit la teneur en eau absorbée.

En faisant varier la température, nous avons montré que la température a tendance à augmenter l'effet LFD en favorisant le transfert de charge entre clusters. Le fait de travailler à une température élevée (60°C ou plus) dégrade sensiblement les propriétés diélectriques du matériau, surtout à des teneurs en eau élevée. Ceci suggère un effet synergique température-eau qui peut conduire à la destruction totale du matériau (claquage thermique).

Les mesures du courant DC en cours de vieillissement nous a fourni à la fois un indicateur du vieillissement et nous ont permis de mettre en évidence la contribution des

tel-00011163, version 1 - 7 Dec 2005

mécanismes de relaxation et de conduction. La loi « universelle » qui fonctionne avec presque toute teneur en eau propose une base théorique afin de comprendre le comportement des clusters d'eau existant dans le matériau.

En se basant sur les résultats obtenus sur la diffusion d'eau et l'évolution des propriétés diélectriques en fonction de la teneur en eau, nous avons calculé les profils de concentration d'eau au cours du temps dans les conditions réelles d'utilisation ainsi que la distribution du champ correspondant à chaque profil. Les résultats obtenus ont montré que le champ est fortement renforcé sur les couches extérieures lorsque le matériau est contaminé par l'eau. La valeur du champ local en présence d'eau peut s'élever à 3 ou 4 fois celle correspondant au fonctionnement normal. Toutefois, le réarrangement du champ agit dans un sens favorable à la tenue des barres, même en présence d'eau (le champ est très faible dans les zones humides). Par contre, la fiabilité à long terme est dégradée. La mesure de la valeur du potentiel sur l'électrode interne à basse fréquence constitue une nouvelle méthode de diagnostic simple et efficace pour estimer l'état du matériau, en particulier dans les zones vulnérables correspondant à la développante des barres. Cette méthode a été validée par de nombreux tests sur des machines réelles.

Résumé

L'objectif de ce travail est d'étudier la diffusion de l'eau (vieillissement hydrothermique) dans un matériau composite époxy utilisé pour l'isolation des barres d'alternateurs, et ses conséquences sur les propriétés diélectriques et électriques du matériau.

Le champ de claquage décroît fortement en présence d'eau. La spectroscopie diélectrique à basse fréquence ($<10^{-1}$ Hz) et à basse tension montre une grande sensibilité des propriétés diélectriques (ϵ ' et tan δ) vis à vis de la teneur en eau absorbée tandis que les mêmes mesures à haute tension ne montrent pratiquement pas de variation par rapport aux premières. En analysant des mesures de spectroscopie diélectrique et des mesures du courant DC, le matériau apparaît comme étant formé par des clusters d'eau entre lesquels le transfert de charge dépend de la température et de la direction du champ appliqué.

Un modèle a été développé pour calculer la distribution du potentiel et du champ dans le matériau vieilli dans une structure de barre. Le calcul du champ met en évidence la chute de fiabilité lors que le matériau subit un vieillissement hydrothermique. Il suggère également une nouvelle méthode efficace de diagnostic de l'isolation.

<u>Mots clefs</u> : Spectroscopie diélectrique, haute tension, époxy composite, diffusion de l'eau, loi de Fick, vieillissement hydrothermique, dispersion à basse fréquence, diagnostic, barre d'alternateur

Abstract

The purpose of this work is to study water diffusion (hydrothermal ageing) into epoxy composite materials used as groundwall insulation in statorbars of turbine generator and its effect on the dielectric and electric properties of the material.

Breakdown voltage is found to be strongly decreased with water uptake. Dielectric spectroscopy at low frequency (below 10^{-1} Hz) and at low field shows a large sensitivity of the dielectric properties (ϵ ' et tan δ) to water uptake, while the same mesurements performed at high field do not show any variation with respect to the former. With the help of DC current measurements, the material is appeared to be constituted of water clusters wherein the charge transport between them is favored by temperature and field direction.

A model have been developed to calculate the potential distribution and electric field in aged material in statorbar structure. The calculation of electric field clarified the drop of reliability when the material is subjected to hydrothermal ageing. This result also suggests a new diagnostic method of insulation.

<u>Keywords</u> : Dielectric spectroscopy, high voltage, epoxy composite, water diffusion, Fick's law, hydrothermal ageing, low frequency dispersion, diagnostic, statorbar