



HAL
open science

Propriétés diélectriques d'une résine époxy chargée d'alumine sous l'effet du champ électrique continu et de la température

Hanen Yahyaoui, Petru Notingher, Serge Agnel, Yannick Kieffel

► **To cite this version:**

Hanen Yahyaoui, Petru Notingher, Serge Agnel, Yannick Kieffel. Propriétés diélectriques d'une résine époxy chargée d'alumine sous l'effet du champ électrique continu et de la température. Journées JCGE'2014 - SEEDS, Jun 2014, Saint-Louis, France. hal-01083915

HAL Id: hal-01083915

<https://hal.science/hal-01083915v1>

Submitted on 18 Nov 2014

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.

Propriétés diélectriques d'une résine époxy chargée d'alumine sous l'effet du champ électrique continu et de la température

Hanen YAHYAOUÏ

Institut d'Electronique du Sud, Université Montpellier 2/CNRS, Montpellier, France

hanen.yahyaoui@ies.univ-montp2.fr

Résumé – *Le comportement diélectrique d'une résine époxy chargée en alumine est analysé dans le présent travail en vue de son utilisation dans de l'appareillage haute tension continue. La rigidité diélectrique du matériau sous champ continu est étudiée en fonction de la température. Les densités de courant traversant le matériau en régime quasi-permanent lorsqu'il est soumis à des champs électriques continus compris entre 1 kV/mm et 40 kV/mm, déterminées dans un intervalle de températures de 20 °C à 105°C, sont analysées. Les mécanismes de conduction prédominants ainsi déterminés et l'évolution des propriétés diélectriques du matériau soumis à un vieillissement électrothermique à 125°C, sous des contraintes électriques continues allant de 4kV/mm à 12 kV/mm, sont étudiés et discutés, dans le but d'améliorer la conception d'appareillages haute tension courant continu.*

Abstract – The electrical behavior of an alumina-filled epoxy resin is investigated in view of its use in high voltage apparatus. Results of breakdown tests carried out under dc voltage and under different temperatures are presented and discussed. Current – voltage characteristics obtained under DC fields comprised between 1 kV/mm and 40 kV/mm, at temperatures of 20°C to 105°C, are analyzed. The evolution of dielectric properties of the material submitted to dc ageing at 125°C under fields of 4 kV/mm to 12 kV/mm is monitored and analyzed.

Mots-Clés – Diélectrique, résine époxy, haute tension continue, conduction, rigidité, charge d'espace

1. Introduction

Les projets de « super réseaux intelligents » prévoient, dans l'avenir, la construction de centrales de production d'énergie électrique à des milliers de kilomètres des centres de consommation [1]. Actuellement, le transport de l'énergie se fait principalement en courant alternatif, mais dans le cas de transport sur des longues distances, le transport en courant continu est économiquement et techniquement plus avantageux. Les principaux verrous au développement de ce type de réseau se situent au niveau du câble et des appareillages, qui doivent être conçus selon des critères spécifiques et comporter des matériaux isolants ayant des propriétés adaptées. En effet, il est établi que, sous fort champ continu, la distribution du champ électrique peut être affectée par des charges électriques injectées au niveau des électrodes et piégées dans l'isolant. L'accumulation de ces charges d'espace est susceptible d'augmenter de manière significative les valeurs du champ électrique dans l'isolant, en accélérant son vieillissement et en amorçant la rupture diélectrique. L'interface électrode/isolant et la variation de la conductivité électrique du matériau avec le champ et la température sont des facteurs déterminants dans la dynamique de ce processus.

Depuis des nombreuses années, ont montré leur fiabilité en tant qu'isolants pour la haute tension alternative dans les disjoncteurs à isolation gazeuse [2]. Elles sont notamment utilisés en tant que composites englobant des charges minérales (silice, alumine), qui permettent d'améliorer leurs caractéristiques thermiques et mécaniques. Cependant, leurs propriétés et leur comportement restent encore insuffisamment connus sous fortes contraintes continues et nécessitent des études approfondies si l'on souhaite les utiliser pour des applications haute tension à courant continu. Dans le présent travail, nous nous intéressons ainsi à leur rigidité diélectrique sous champ continu, à leurs propriétés de conduction et d'accumulation de charges d'espace et, d'une manière plus générale, à l'évolution de ces matériaux lorsqu'ils sont soumis à des contraintes électro-thermiques pendant des longues durées (vieillessement).

2. Mise en œuvre expérimentale

2.1 Matériaux et échantillons

Le matériau étudié est une résine époxyde composée d'une matrice de Diglycidyl éther de Bisphénol A (DGEBA), d'un durcisseur anhydride (HY 225) et d'une charge d'alumine (Al_2O_3). Le taux de charge est de 66% en masse. Le type d'échantillon utilisé dans ce travail est représenté dans la Figure 1. Il s'agit d'échantillons de type plaque carrée, qui, afin de limiter les effets liés à l'augmentation du champ électrique aux bords des électrodes, ont subi un usinage dans l'épaisseur pour obtenir un profil de la zone contrainte électriquement s'apparentant à un profil Rogowski. L'épaisseur au centre (zone « utile ») a été de 0,7 mm.

2.2 Rigidité diélectrique

Des tests de rigidité diélectrique ont été effectués selon les prescriptions de la norme CEI 60243-1[3] sur des échantillons ayant le profil de la Figure 1. Dans le but de s'approcher au plus des caractéristiques intrinsèques du matériau en réduisant les décharges à la surface, les échantillons ont été pourvus d'électrodes en graphite de 50 mm de diamètre. Afin d'allonger les lignes de champ électrique, un tube isolant de hauteur 120 mm a été collé sur chaque échantillon. La tension appliquée durant les a été délivrée par une alimentation haute tension continue de type Sefelec HT19, pouvant délivrer des valeurs jusqu'à 150 kV. La tension a été appliquée puis augmentée automatiquement en raison de 2kV/s jusqu'à atteindre la rupture diélectrique de l'échantillon. Les essais se sont déroulés dans de l'huile silicone, à trois températures (20°C, 60°C et 85°C). L'utilisation de l'huile a permis de limiter sensiblement d'éventuels phénomènes de contournement. Les échantillons à tester ont été préalablement portés à la température d'essai dans une étuve. La température de l'huile chauffée a été soigneusement contrôlée tout au long de l'étude.

Du fait de la distribution aléatoire des défauts structurels dans un échantillon, la mesure de rigidité diélectrique d'un polymère ne peut se satisfaire d'une seule mesure. Il y a donc lieu à procéder à plusieurs tests et en faire une analyse statistique. Pour cette raison, les tests de rigidité ont été effectués sur 50 échantillons à 25°C, sur 28 échantillons à 60°C et sur 45 échantillons à 85°C. Les données recueillies sont traitées statistiquement en utilisant la loi de Weibull à deux paramètres [4] :

$$P(E_i) = 1 - \exp \left[- \left(\frac{E_i}{\alpha} \right)^\beta \right] \quad (1)$$

avec α facteur d'échelle qui représente la rigidité diélectrique pour $P(\alpha) = 0.632$ et β facteur de forme, relié à la dispersion des données. La rigidité diélectrique E_i est calculée à travers le rapport entre la tension de claquage U_c et l'épaisseur de l'échantillon (distance entre électrodes) d :

$$E_i = \frac{U_c(i)}{d} \quad (2)$$

Pour déterminer la probabilité $P(E_i)$, nous avons utilisé l'expression de Ross [5-6] :

$$P(E_i) = \frac{N_i - 0.44}{N_{max} + 0.25} \quad (3)$$

avec N_i et N_{max} respectivement le rang de l'échantillon et le nombre total d'échantillons claqués.

Généralement, la loi de Weibull est tracée dans un diagramme bi-logarithmique, de manière à être aisément linéarisée à partir de la relation (1) [5-6] :

$$\log_{10} \left[\ln \left(\frac{1}{1 - P(E_i)} \right) \right] = \beta [\log_{10}(E_i) - \log_{10}(\alpha)] \quad (4)$$

On peut alors déterminer par régression linéaire les valeurs des paramètres α et β .

2.3 Courants de conduction

Pour la détermination expérimentale des valeurs des courants de conduction, chaque éprouvette a été pourvue, sur l'une des faces, de 2 électrodes concentriques : l'une en forme de disque, composée d'une couche d'or superposée à une couche de chrome, de diamètre 30 mm (électrode de mesure), l'autre de type couronne de diamètre intérieur 34 mm, ayant pour rôle de dériver les courants superficiels vers la terre (anneau de garde). Sur l'autre face, une électrode circulaire de 54 mm de diamètre a été déposée (électrode « haute tension », servant à appliquer le potentiel) (Figure 2). Afin d'allonger les lignes de contournement, un tube isolant de hauteur 100 mm et de diamètre légèrement supérieur à l'électrode haute tension a été également collé sur chaque échantillon.

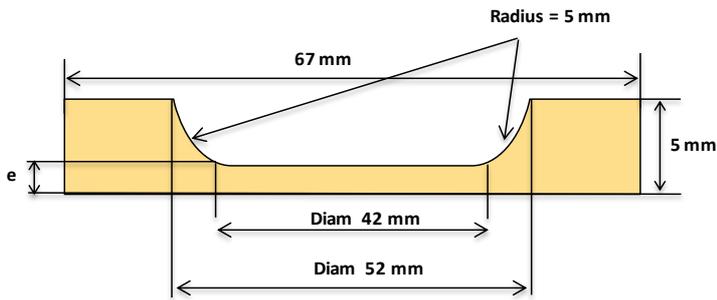


Figure 1. Profil des échantillons utilisés



Figure 2. Electrodes d'un échantillon utilisé pour la mesure des courants de conduction

Pendant la mesure, chaque échantillon a été placé dans une étuve régulée et porté à la température désirée. Les mesures ont été effectuées aux températures suivantes : 20°C, 60°C, 85°C et 105°C. Le montage qui a servi lors de ces mesures est schématisé dans la Figure 3. Les tensions appliquées aux électrodes (jusqu'à 27 kV) ont été délivrées par une source haute tension continue stabilisée (Fug HCP140-35000). Les mesures de courant ont été effectuées à l'aide d'un électromètre Keithley 6517A.

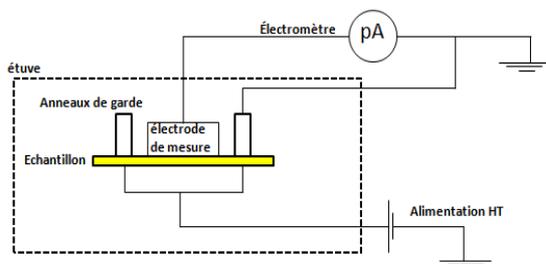


Figure 3. Mise en œuvre expérimentale pour la détermination de la caractéristique I-V

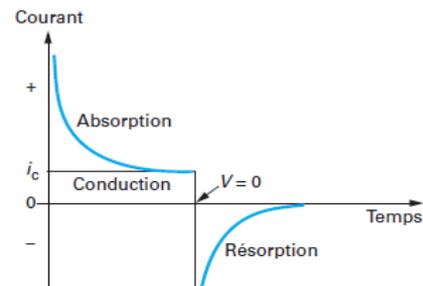


Figure 4. Courants d'absorption, conduction et résorption

Les caractéristiques courant-tension (I-V) à une température donnée ont été tracés à partir des valeurs du courant mesuré en régime quasi-permanent. En effet, à la mise d'un diélectrique sous tension continue, il apparaît d'abord un courant transitoire (dit courant d'absorption), qui décroît en fonction du temps. Il traduit les différents phénomènes liés aux déplacements localisés des charges dans le matériau (polarisation) et/ou aux interfaces entre celui-ci et ses électrodes. La durée de ce régime transitoire dépend de la structure du matériau et du champ appliqué, et peut être très longue avant d'obtenir une valeur stable du courant i_c , qui correspond uniquement à la conduction (Figure 4). Le régime permanent n'est atteint en pratique qu'après des temps extrêmement longs (plusieurs heures, voire quelques jours ou semaines). Pour cette raison, les calculs sont le plus souvent effectués à partir des courants pseudo-permanents, c'est à dire dont la variation en fonction du temps est très faible [7]. Une fois le régime quasi-permanent atteint, l'échantillon est mis en court-circuit pendant une durée équivalente à celle de la mesure (résorption) afin d'assurer sa dépolarisation complète. Pour tracer les caractéristiques I-V, nous avons relevé la valeur du courant après 10 000 s (Figure 6 ci-après).

2.4 Spectroscopie diélectrique mesures de charges d'espace

La capacité et le facteur de pertes des échantillons ont été mesurés en utilisant un analyseur d'impédance Solartron SI 1260 connecté à une interface diélectrique 1296 et à une cellule d'essais. Les mesures ont été réalisées à température ambiante dans une gamme de fréquences allant de 0,1 Hz à 1MHz, sous une tension alternative de 2V efficace. Les échantillons employés n'étant pas des structures plan-parallèles, la détermination de la permittivité à partir de la capacité C mesurée par le spectroscope n'est pas possible avec l'expression bien connue $C = \epsilon_0 \epsilon_r S/d$. La capacité totale de l'échantillon C peut être vue comme la mise en parallèle de deux capacités C_1 et C_2 : C_1 correspond à la zone d'épaisseur constante $d = 0,7$ mm et de diamètre 42 mm (donc de surface $S = \pi \cdot 42^2 / 4$, $C_1 = \epsilon_0 \epsilon_r S/d$), alors que C_2 correspond à la zone se trouvant à la périphérie des électrodes, d'épaisseur variable. On peut alors écrire :

$$C = C_1 + C_2 = C_1(1 + C_2/C_1) = \delta_g C_1 \quad (5)$$

A partir des dimensions de l'échantillon (Figure 1), nous avons déterminé par simulation le facteur « de géométrie » $\delta_g = 1,37$, ce qui nous a permis par la suite d'extraire la valeur de la capacité plan-parallèle C_1 directement de la capacité mesurée C , puis ϵ_r à l'aide de l'expression de C_1 .

2.5 Vieillessement électro-thermique sous champ continu

Afin de déterminer l'effet de l'exposition prolongée du matériau à des contraintes électro-thermiques comparables à celles pouvant être rencontrées en service, 15 échantillons ont été vieillis durant 70 jours dans une étuve régulée en température à 125°C. Pour limiter les décharges autour des électrodes et éviter l'utilisation de liquides diélectriques, le vieillissement a été réalisé sous azote à une pression de 1 bar. Une cellule spéciale a été fabriquée pour assurer ces conditions de vieillissement. En utilisant les valeurs des champs « seuils » donnés par les résultats de courants de conduction, le vieillissement a été fait sous 3 champs continus 12, 8 et 4 kV/mm. Un diviseur de tension couplé à la cellule a permis d'appliquer simultanément les 3 champs de vieillissement dans la même cellule. Ainsi, des lots de 5 échantillons ont été vieillis respectivement sous 12, 8 et 4 kV/mm. Les échantillons ont été retirés périodiquement de la cellule de vieillissement et des mesures de capacité, de facteur de pertes et de charges d'espace ont été effectuées.

La mesure de charges d'espace accumulée durant le vieillissement a été suivie par la méthode de l'onde thermique [8-9], en conditions de court-circuit et avec un échelon thermique de -30K (25°C à -5°C)

3. Résultats et discussion

3.1 Rigidité diélectrique sous champ continu

L'exploitation des résultats obtenus suite aux tests de rigidité a été effectuée en utilisant la statistique de Weibull (EMBF, ou valeur du champ critique moyen de bon fonctionnement, correspond à $EMBF = \alpha$, tel que $P(EMBF) = 0,632$). Dans la Figure 5 sont représentés les résultats obtenus aux trois températures (25, 60 et 85°C). A partir de ces courbes, nous avons déterminé les valeurs de facteur d'échelle α et de facteur de forme β regroupés dans le Tableau 1.

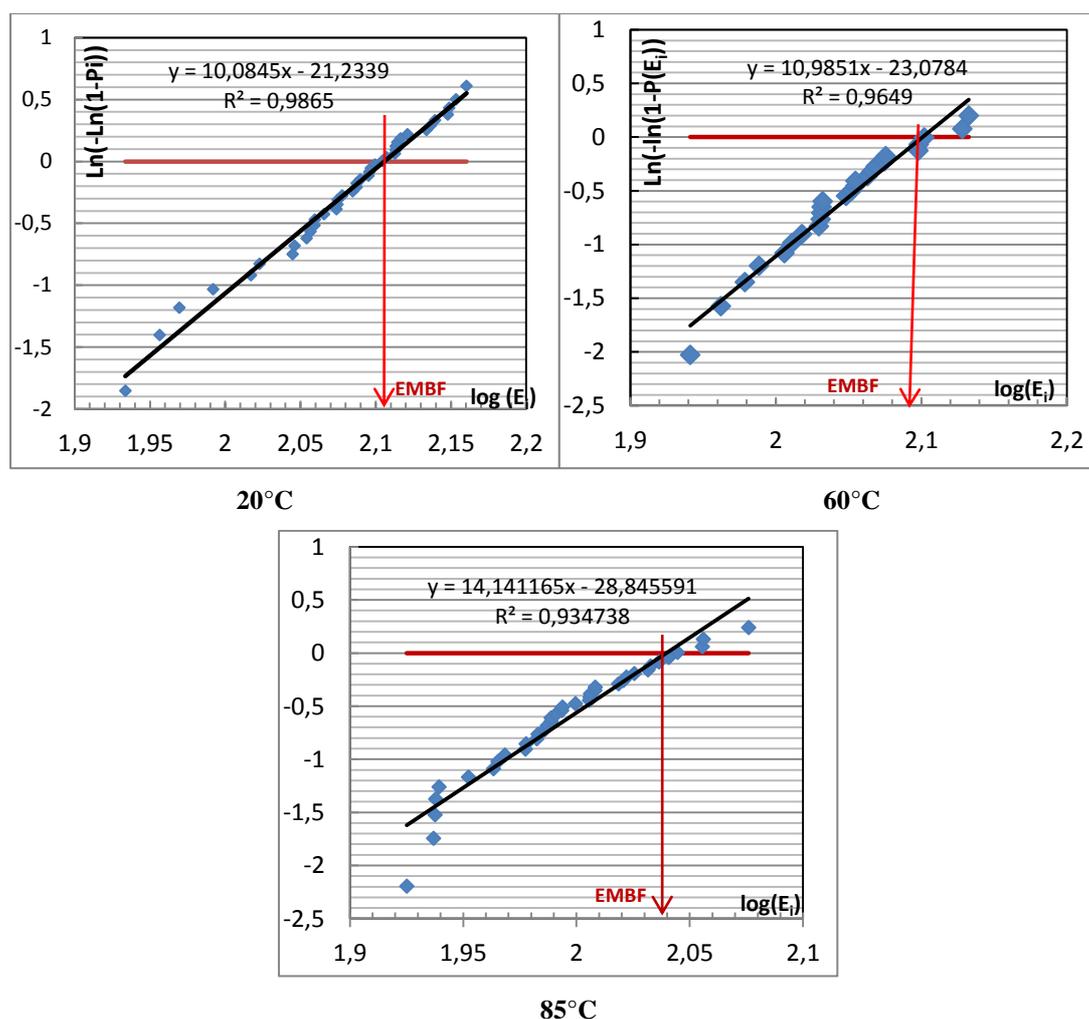


Figure 5. Représentation des résultats des tests de claquage selon la statistique de Weibull

Tableau 1. Résultats des tests de rigidité diélectrique

Température	β	$\alpha = \text{EMBF [kV/mm]}$	$E_{\text{moy [kV/mm]}}$
25°C	10.08	127.52	121.32
60°C	10.98	126.14	111.62
85°C	14.14	109.6	99.56

Les rigidités obtenues varient de 109 à 127 kV/mm, en fonction de la température. Ainsi, si la rigidité varie peu entre 25 et 60°C, elle diminue de 15% à 85°C. On peut noter que le facteur de forme est sensiblement le même à 25°C et à 60°C, mais plus élevé à 85°C. Comme ce facteur diminue avec l'augmentation de la dispersion, il témoigne d'une dispersion plus importante des résultats pour les essais réalisés aux températures inférieures à 85°C. En effet, malgré un nombre important d'échantillons testés (ex. 50 échantillons à 25°C), la dispersion des résultats est restée supérieure à 15% à 25°C et à 60°C. Les résultats des tests de rigidité étant liés à l'état de surface, il est probable que cette dispersion soit liée à l'usinage réalisé pour réduire l'épaisseur des échantillons et obtenir le profil souhaité. La dispersion plus faible observée à 85°C peut alors s'expliquer par un léger ramollissement du matériau avec la température, ayant tendance à réduire les irrégularités dues à l'usinage.

Dans tous les cas, il s'agit de valeurs largement supérieures à la valeur du champ appliqué lors d'une utilisation dans un disjoncteur à isolation gazeuse (qui ne dépasse pas quelques kV/mm).

3.2 Mécanismes de conduction

Les courants d'absorption relevés à différentes températures sur un échantillon soumis à une tension de 1 kV sont présentées dans la Figure 6. On constate qu'après 10000 s les variations des courants sont très faibles (sauf à température ambiante, où le courant décroît toujours légèrement). Nous avons donc employé la moyenne du courant d'absorption sur les 100 dernières secondes avant l'arrêt de la tension pour calculer la valeur de régime quasi-permanent utilisé dans les tracés des caractéristiques courant-tension. Afin d'identifier les phénomènes de conduction dans le matériau, les résultats ont été analysés en utilisant différentes représentations de la densité de courant de conduction J en fonction du champ électrique appliqué E , chaque représentation permettant d'obtenir des renseignements sur le mécanisme majoritaire.

La représentation en double échelle logarithmique de la Figure 7 met en évidence, pour les faibles valeurs du champ appliqué, une partie linéaire de pente 1, caractéristique d'une conduction de type ohmique. Les valeurs de conductivité volumique calculées à partir du régime ohmique sont de l'ordre de 10^{-16} S/m (à 20°C) à 10^{-12} S/m (à 105°C), dans la gamme rencontrée dans la littérature [10]. A partir d'une certaine valeur du champ électrique appliqué (champ « seuil » de l'ordre de 4,5 à 9 kV/mm, selon la température), on observe une transition vers des pentes de valeurs supérieures à 1, qui traduisent un régime non ohmique. A 25°C, 60°C et 85°C on relève, à fort champ, des pentes égales ou légèrement supérieures à 2, caractéristiques d'un régime limité par charges d'espace (« Space Charge Limited Current – SCLC »), où la dépendance densité de courant/tension électrique est donnée par la loi de Mott et Guerny [11] :

$$J = \frac{9}{8} \epsilon_r \epsilon_0 \mu \frac{V^2}{d^3} \quad (6)$$

avec μ mobilité des porteurs de charge, ϵ_r permittivité relative du diélectrique, ϵ_0 permittivité du vide, $V = E \cdot d$ tension appliquée et d épaisseur de l'échantillon. La pente obtenue à 20°C est très proche de 2 (régime sans pièges ou avec piégeage à un seul niveau), alors que les pentes correspondant à 60°C et 85°C sont égales à 2,2 (piégeage avec plusieurs niveaux de pièges). On conclut ainsi, pour des températures inférieures à 85°C, à un régime ohmique à champ faible et à un régime limité par charges d'espace à champ fort, où le piégeage peut se faire dans des pièges de différentes profondeurs pouvant se situer dans la résine et/ou aux interfaces résine/charge minérale.

A 105°C, la pente de la droite obtenue à champ fort en interpolant les données expérimentales est de 1,4, donc supérieure à 1 mais inférieure à 2. Bien que décrivant une dépendance $J(E)$ non linéaire, cette valeur est trop faible pour témoigner d'un régime contrôlé par charge d'espace. La conduction à cette température est donc visiblement régie par un autre mécanisme, tel qu'on a pu l'observer sur ce type de résine en haute température [12]. L'un des mécanismes de conduction volumique souvent rencontré dans les isolants soumis à des champs forts est le mécanisme de Poole et Frenkel. Il met en évidence une conduction amplifiée par la diminution, sous l'effet du champ électrique, de la hauteur de la barrière de potentiel que les porteurs émis d'un site donneur doivent franchir.

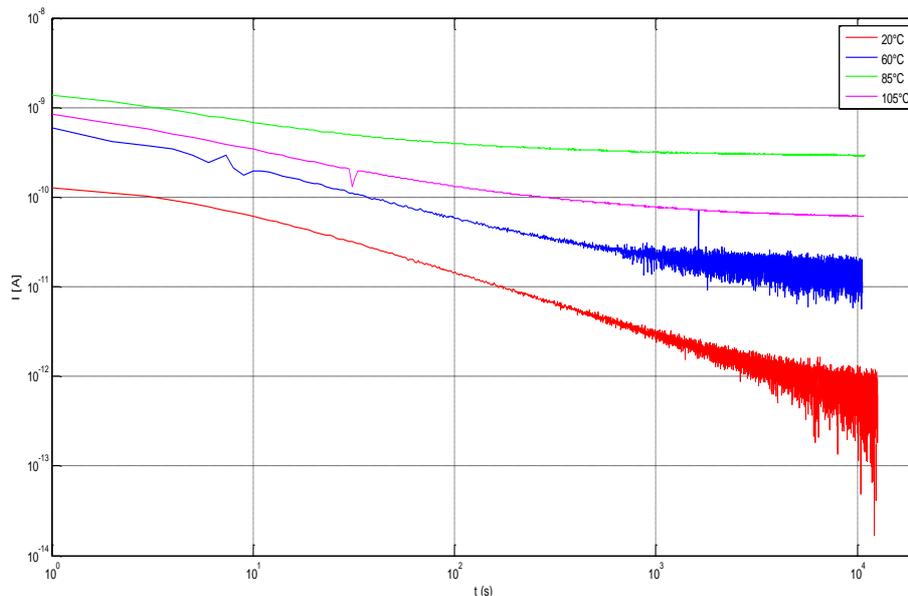


Figure 6. Courants d'absorption mesurés à différentes températures pour une tension appliquée de 1kV

Dans ce cas, la conductivité vaut :

$$\sigma = \sigma_0 \exp(\beta_{PF} \sqrt{E} / (k T)) \quad (7)$$

avec σ_0 conductivité intrinsèque du matériau et $\beta_{PF} = \sqrt{q^3 / (\pi \epsilon_0 \epsilon_r)}$ constante de Poole-Frenkel. Puisque $J = \sigma E$, au cas où ce mécanisme est majoritaire, une représentation des données en coordonnées $\ln(J/E) = f(E^{1/2})$ doit donner une droite de pente proche de $\beta_{PF}/(kT)$. Des représentations en coordonnées Poole-Frenkel sont illustrées dans la Figure 8. (a). Comme on pouvait s'y attendre, ces représentations ne sont pas vraiment assimilables à des droites à 20°C, 60°C et 85°C. Ceci n'est pas surprenant, car nous avons vu précédemment que le mécanisme de conduction à fort champ à ces températures est de type SCLC. A 105°C, la représentation peut s'identifier à une droite, mais sa pente est nettement inférieure à $\beta_{PF}/(kT)$ ($1,4 \cdot 10^{-4}$ au lieu de 10^{-3}). On en déduit qu'un mécanisme de conduction majoritairement de type Poole-Frenkel ne peut pas expliquer la dépendance courant-tension observée à 105°C.

Un autre mécanisme pouvant intervenir dans les solides est le mécanisme de conduction par sauts (« hopping »), qui décrit le déplacement des charges de piège en piège. Le courant correspondant varie selon une loi en $\sinh(e \lambda E / (2 k T))$, avec λ distance moyenne entre pièges ; la caractéristique densité de courant/champ électrique se traduit alors par une droite dans une représentation $J = f(\sinh(e \lambda E / (2 k T)))$. Dans notre cas, de telles représentations n'ont pas donné des droites, ce qui nous a permis d'écarter ce mécanisme de conduction (en particulier à 105°C).

Les courants mesurés peuvent également être contrôlés par l'interface métal/isolant à travers des mécanismes d'injection de type Fowler-Nordheim ou Schottky. Dans le premier cas, la représentation de $\ln(J/E^2) = f(1/E)$ est une droite. Cette condition n'était pas satisfaite dans notre cas, puisque les courbes que nous avons tracées (non montrées ici) ne présentaient pas une allure linéaire. Il n'est par ailleurs pas surprenant qu'une telle loi ne puisse pas modéliser nos résultats puisque l'effet Fowler Nordheim (ou « loi d'émission froide ») n'est significatif que pour des barrières isolantes très fines obtenues pour des champs de l'ordre de 10^9V/m [13], largement supérieurs aux nôtres.

L'émission par effet Schottky traduit l'injection de charges dans l'isolant par-dessus de la barrière de potentiel que représente l'interface. La densité de courant due à l'effet Schottky s'écrit :

$$J_S = A_S T^2 \exp\left(-\frac{\phi_0 - \beta_S \sqrt{E_C}}{k T}\right) \quad (8)$$

avec ϕ_0 hauteur de la barrière en l'absence du champ appliqué, A_S constante de Richardson pour l'émission thermoélectronique, $\beta_S = \sqrt{q^3 / (4 \pi \epsilon_0 \epsilon_r)}$ constante de Schottky, k constante de Boltzmann et E_C champ électrique à la cathode. Le champ à la cathode E_C pouvant être modifié par la présence éventuelle de charge d'espace, sa valeur n'est pas toujours celle du champ appliqué V/d .

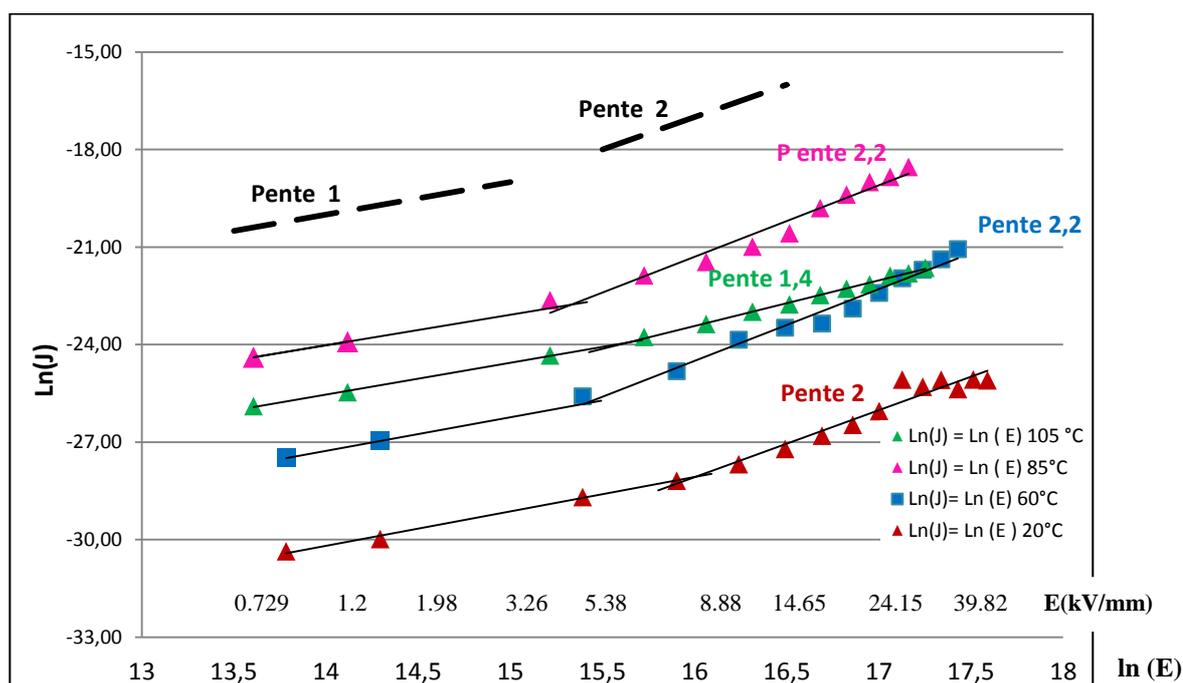


Figure 7. Représentation des caractéristiques J-E en double échelle logarithmique

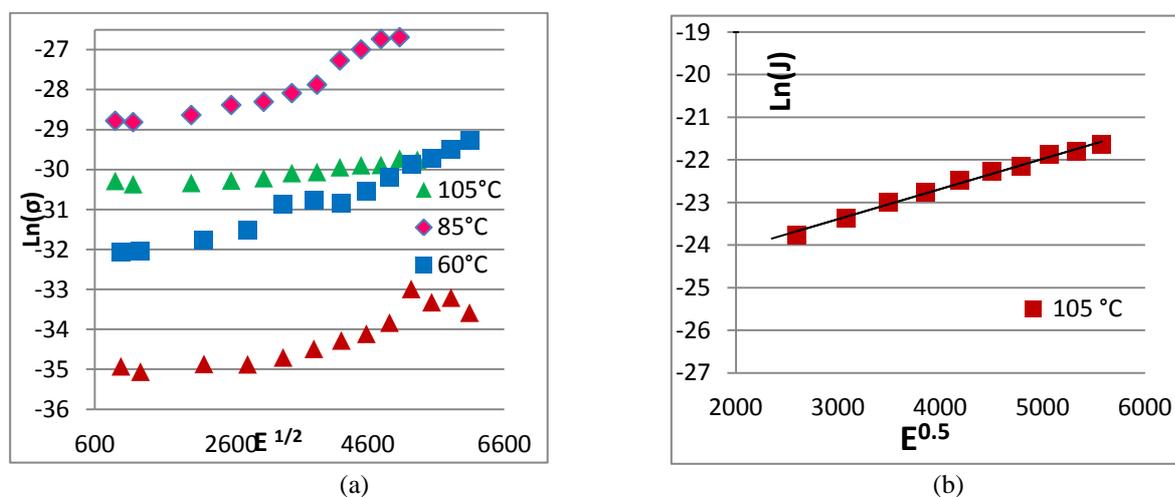


Figure 8. (a) Représentations $\ln(J/E)=f(E^{1/2})$, (b) Représentation en coordonnées Schottky de la région des champs forts de la caractéristique courant/tension obtenue à 105°C

On peut rendre compte de l'état électrique du contact par un paramètre sans dimension γ tel que [14] :

$$E_c = \gamma V/d \quad (9)$$

avec $\gamma < 1$ si homocharge dominante au contact et $\gamma > 1$ si hétérocharge dominante au contact. Les relations (8) et (9) montrent que, si la conduction est contrôlée par une émission Schottky, $\ln(J)$ est proportionnel à $(V/d)^{1/2}$: la représentation de $\ln(J)$ en fonction de $(V/d)^{1/2}$ est alors une droite. La connaissance de ϵ_r et de la pente expérimentale permet de trouver γ , alors que la prolongation de cette droite permet de trouver ϕ_0 .

Les données obtenues à champ fort pour une température de 105°C ont été tracées en coordonnées Schottky dans la Figure 8.b. On observe clairement une droite, dont la pente est donnée dans le Tableau 2, accompagnée de la pente théorique correspondant à un effet Schottky pur. La hauteur de la barrière de potentiel et la valeur du facteur de renforcement du champ à l'interface γ déterminées à partir de cette représentation y figurent également.

Tableau 2. Grandeurs relatives à un mécanisme de type Schottky à 105°C

Pente de $(LnJ_s)=f\left(\left(\frac{V}{d}\right)^{1/2}\right)$	$\frac{\beta_S}{kT}$	γ	ϕ_0 (eV)
$7 \cdot 10^{-4}$	$5,4 \times 10^{-4}$	1,63	1,37

La valeur de 1,63 trouvée pour γ implique une augmentation de 63% du champ au voisinage de l'interface. De telles hausses peuvent apparaître aux interfaces à cause d'hétérocharges (ex. [15]), qui peuvent se trouver en majorité bloquées aux électrodes. Avec l'augmentation de la température et de la tension appliquée, la situation peut s'inverser suite à une émission importante au contact [14], et on peut ainsi assister à l'établissement d'une couche de charge d'espace de même signe que l'électrode injectante : on parle alors d'homocharge, qui a pour effet de baisser le champ au contact, et qui pourrait être observée dans notre cas à des températures plus élevées. La hauteur de barrière calculée est dans l'intervalle usuellement observé pour les polymères munis d'électrodes métalliques (1 à 1,5 eV). On peut ainsi conclure que la conduction sous champ fort est régie majoritairement, à 105°C, par l'interface électrode/diélectrique, via un mécanisme d'injection de type Schottky. Il est à noter que le comportement observé au dessus de 85°C pourrait être corrélé avec la baisse de la rigidité diélectrique de 15% observée à cette température. Ce comportement nécessite sans doute d'être approfondi.

3.3 Evolution des propriétés diélectriques pendant le vieillissement

Pour évaluer le comportement diélectrique du matériau à long terme, un vieillissement sous champ électrique continu a été réalisé à une température de 125°C. L'évolution diélectrique du matériau a été caractérisée par spectroscopie diélectrique à température ambiante (Figure 9) et par des mesures de charges d'espace (Figures 10-11). Afin d'obtenir des résultats statistiquement représentatifs, chaque courbe de la Figure 9 représente la moyenne des données obtenues sur chaque 5 échantillon vieillis sous le même champ. Une diminution significative de la permittivité du matériau et du facteur de pertes peut être observée en basses fréquences suite à l'application de la contrainte thermique. Ceci peut être dû à la diminution de la mobilité moléculaire de la structure résultant d'une poursuite de la réticulation et/ou à l'élimination d'eau. Après la baisse de permittivité et de facteur de pertes observée au début du vieillissement, il n'y a pas d'évolution des spectres diélectriques pouvant être directement reliée au temps de vieillissement. En effet, les spectres oscillent légèrement autour des mêmes valeurs, et on n'observe pas de lien apparent entre leur évolution et la durée d'application de la contrainte. De la même manière, aucun effet significatif lié à l'amplitude du champ de vieillissement ne peut être mis en évidence. On peut donc conclure que les effets observés sur les spectres diélectriques sont principalement provoqués par la température.

La conductivité du matériau ou les effets de dispersion à faible champ peuvent être mis en évidence à des fréquences basses (observation d'une pente égale à -1 pour la permittivité imaginaire). Ce type de comportement, dont l'évolution sous l'effet du champ continu est susceptible d'apporter des informations d'un point de vue électrique, est difficilement identifiable sur les caractéristiques mesurées, sans doute parce qu'il devient observable dans notre matériau à des fréquences plus basses (10^{-2} à 10^{-4} Hz). Étant donné les durées importantes que nécessitent des mesures à 10^{-2} - 10^{-4} Hz et le nombre d'échantillons nécessaires pour obtenir des résultats statistiquement significatifs, un suivi de l'évolution de nos spectres à de telles fréquences était difficilement compatible avec une durée raisonnable de l'étude. En revanche, le suivi de l'accumulation de charges d'espace, qui est la principale responsable des problèmes de fiabilité sous fort champ continu, est nettement moins contraignant en termes de temps de mesure.

Afin de suivre l'évolution des charges d'espace, les échantillons ont été évalués par la méthode de l'onde thermique (MOT). Nous rappelons que son caractère « non destructif » permet à la MOT d'évaluer l'état électrique interne d'un matériau sans le modifier pendant la mesure. Cette technique est basée sur la diffusion de la température dans un échantillon placé en court-circuit, qui provoque des déplacements légers, localisés et temporaires des charges piégées, ainsi que des faibles variations de la permittivité. Il en résulte une redistribution des charges d'influence aux électrodes, se traduisant par l'apparition d'un courant capacitif dans le circuit extérieur. Dans le cas d'un échantillon plan ou cylindrique, ce courant permet de déterminer la répartition du champ électrique et de la densité de charges d'espace à travers l'échantillon. Le profil particulier des échantillons utilisés dans ce travail (Figure 1) ne nous a pas permis d'extraire les courbes de répartition des charges et du champ avec une précision suffisante. Les courants d'onde thermique mesurés sur les échantillons (ex. Figure 10) ont alors été employés pour évaluer l'évolution du champ interne et des charges d'espace durant le vieillissement. Comme ces signaux ont des formes similaires, il est possible de comparer leurs amplitudes pour mesurer l'évolution de la charge d'espace pendant le vieillissement (Figure 11). Le courant d'onde thermique I_{MOT} étant proportionnel à la capacité, pour pouvoir comparer les divers échantillons il faut normaliser I_{MOT} par rapport à la capacité C de chaque échantillon : on a ainsi représenté dans la figure 11 le rapport I_{MOT}/C . Chaque point est la moyenne de $I_{MOT-max}/C$ sur 5 échantillons vieillis sous le même champ électrique.

Les Figures 10 et 11 montrent que les amplitudes des courants MOT augmentent avec la durée du vieillissement pour les 3 valeurs du champ appliqué. En considérant que l'amplitude des courants MOT est liée à la charge accumulée, on peut en déduire que l'accumulation de charges d'espace est de plus en plus importante à mesure que le vieillissement avance. Tout le long du vieillissement suivi, les échantillons soumis aux champs électriques les plus élevées montrent les niveaux de charges les plus forts. Néanmoins, la variation temporelle du rapport $I_{Mot-max}/C$ n'est pas monotone : une augmentation brusque est observée après les premiers jours de conditionnement, puis les valeurs diminuent pendant les jours suivants et recommencent à augmenter avec une vitesse différente après 21 jours. Les vitesses de variation de $I_{Mot-max}/C(t)$ sont à peu près similaires pour les trois valeurs du champ de vieillissement, mais elles deviennent dépendantes du champ après 21 jours. Ainsi, si cette dynamique est similaire sous 4 et 8 kV/mm, elle paraît plus rapide dans le cas des échantillons vieillis sous 12 kV/mm, en particulier après 50 jours.

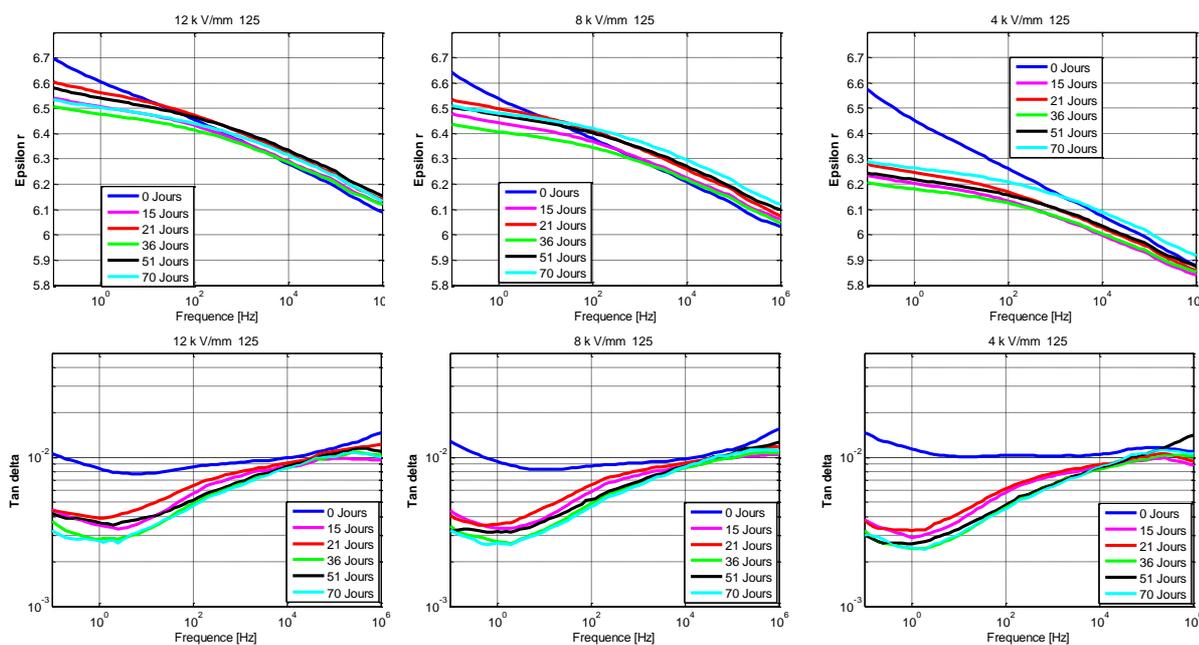


Figure 9. Evolutions de spectres diélectriques pendant les vieillissements sous 12, 8 et 4 kV/mm à 125°C

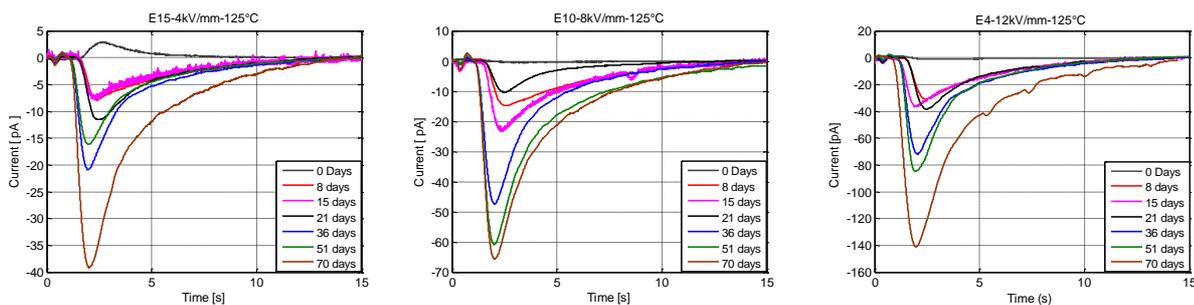


Figure 10. Evolutions de courants d'onde thermique mesurés sur des échantillons vieillis sous 12, 8 et 4 kV/mm à 125°C

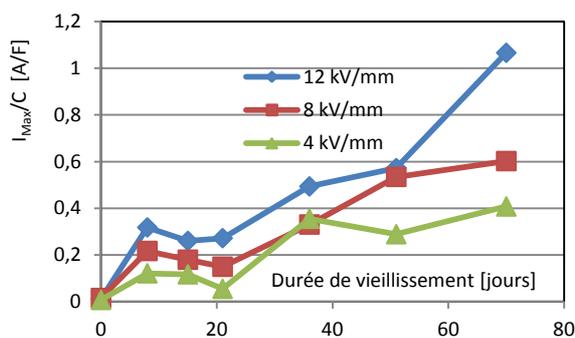


Figure 11. Evolution de l'amplitude normalisée des courants MOT pendant le vieillissement sous 12, 8 et 4 kV/mm à 125°C

On peut conclure que le champ interne croît dans le matériau étudié avec le temps d'application de la contrainte, en augmentant le risque d'un dépiégeage de charge significatif menant au claquage. Il convient de continuer à étudier cette évolution pour des durées plus importantes afin de déterminer si une valeur maximale est atteinte, et si elle peut être corrélée avec une baisse de la rigidité diélectrique.

4. Conclusions et perspectives

Les tests de rigidité diélectrique effectués sous champ continu sur la résine époxyde chargée en alumine ont montré des valeurs comprises entre 109 et 127 kV/mm, caractéristiques d'un bon isolant. Nous avons observé que la rigidité diélectrique diminue avec la température au dessus de 60°C (15% de diminution observée entre 60°C et 85°C).

Les caractéristiques courant-tension relevées à 25°C, 60°C, 85°C et 105°C ont permis de déterminer les mécanismes de conduction prédominants dans des échantillons de résine époxy chargée d'alumine. Ainsi, après un régime ohmique présent pour des champs inférieurs à quelques kV/mm quelle que soit la température, un mécanisme de conduction volumique de type « courants limités par charges d'espace » a été mis en évidence en-dessous de 85°C. Le seuil de passage observé entre les deux régimes a été de l'ordre de 4 à 9 kV/mm, en fonction de la température. A 105°C, l'analyse des données a fait ressortir un mécanisme contrôlé par l'interface, à savoir une injection de type Schottky, qui devient prédominante à partir de 4 kV/mm. Les résultats obtenus confirment l'influence significative de la température sur le comportement du matériau sous contrainte électrique continue. Il serait intéressant d'étudier une éventuelle relation entre les changements de mécanisme de conduction observé aux alentours de 100°C et la transition vitreuse du matériau, qui se situe dans cette gamme de température.

Le suivi des caractéristiques diélectriques du matériau suite à un vieillissement longue durée sous tension continue et haute température (125°C), à des champs électriques de 4, 8 et 12 kV/mm pendant 70 jours, a mis en évidence des évolutions de la permittivité et du facteur de pertes attribuées principalement à la contrainte thermique.

La contrainte électro-thermique a induit une accumulation de charges d'espace ayant tendance à augmenter avec la durée de vieillissement et avec la valeur du champ. Le suivi de l'accumulation des charges d'espace pendant des périodes plus importantes devrait permettre de déterminer si une valeur maximale de la charge est atteinte pour une température donnée et de fournir des informations sur les valeurs du champ appliqué pour lesquelles un tel comportement peut être observé, en permettant d'améliorer la conception des appareillages haute tension continue utilisant ce matériau.

References

- [1] L. Esmeralda Garcia Moreno, The DESERTEC Project, the concept design for the supply Europe with electricity from large distances. International research conference, Dortmund, 24/25 June 2011
- [2] Y. Kieffél, A. Girodet, K. Pohlink, S. Bouti, D. Beauguette, "Suitability of thermoplastic polymer used as insulator for HV apparatuses," *European Journal of Electrical Engineering*, Vol. 15, pp169 - 178, (2012).
- [3] Norme internationale CEI 60243-1 "Rigidité diélectrique des matériaux isolants - Méthodes d'essais", 1998
- [4] W. Weibull, "A statistical distribution function of wide applicability, *journal of applied mechanics*, Vol 18, pp.293-297, 1951
- [5] IEEE Guide for the statistical analysis of electrical insulation breakdown data, IEEE 930, 2007-07
- [6] R. Ross, "graphical methods for plotting and evaluating Weibull distributed data, *Proceedings of the IEEE International conference on properties and applications of dielectric materials*, pp 250-253, 1994
- [7] B. Fallou, "Caractéristiques des matériaux isolants solides, méthodes de mesure, valeurs et signification", *Techniques de l'ingénieur*, D214, Septembre 1970
- [8] A. Cernomorocco, P. Notingher, "Application of the thermal step method to space charge measurements in inhomogeneous solid insulating structures: A theoretical approach," *App. Phys. Lett.*, 93, 192903, 2008.
- [9] P. Notingher, A. Toureille, S. Agnel, J. Castellon, "Determination of Electric Field and Space Charge in the Insulation of Power Cables With the Thermal Step Method and a New Mathematical Processing," *IEEE Trans. Ind. App.*, vol. 45, no. 1, pp. 67-74, 2009.
- [10] Manfred Beyer, "Electrical and dielectric behavior of cast epoxy resins", Schering Institute for High-Voltage Engineering and High-Voltage equipment Hannover University, Germany, 1991
- [11] R. Coelho, B. Aladenize, "Les diélectriques", Ed. Hermès, Paris, (1993)
- [12] C. Guillermin, P. Rain, S. W. Rove, "Transient and steady-state currents in epoxy resin", *J. Phys. D: Appl. Phys.* 39 (2006) 515-524
- [13] L. A. Dissado, J. C. Forhergill, "Electrical Degradation and breakdown in polymers", London, 1992
- [14] A. Toureille, "Sur les phénomènes de conduction à champ électrique élevé dans les hauts polymères", Thèse D'état, Université des sciences et techniques du Languedoc (1974)
- [15] P. Notingher, A. Toureille, J. Santana, L. Martinotto, M. Albertini, "Space Charge Accumulation in Polyolefines Submitted to ac Stress", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 8, no. 6, pp.972-984, 2001