

Recherche

Modèle de prédiction de durée de vie – Étude du comportement des polymères et composites à matrice organique

Par Xavier Colin *

Laboratoire « Procédé et Ingénierie en Mécanique et Matériaux » (UMR 8006), Arts et Métiers ParisTech, 151 boulevard de l'Hôpital, 75013 Paris, France

Contact : xavier.colin@paris.ensam.fr

L'équipe « Vieillessement des Matériaux Organiques » du laboratoire Procédé et Ingénierie en Mécanique et Matériaux, aux ARTS et MÉTIERS ParisTech, a développé le Modèle de Prédiction de Durée de Vie en vue de la prédiction du comportement des polymères et composites à matrice organique. Le modèle a déjà fait preuve d'un réel pouvoir prédictif dans le cadre de diverses applications industrielles, par exemple dans la prédiction de la rupture sous l'effet couplé d'un chargement mécanique et d'une dégradation chimique.

Le domaine du vieillissement des matériaux polymères et composites est, depuis son origine, la « chasse gardée » de deux communautés quasi autonomes : la communauté des chimistes qui développe l'analyse des produits de réaction et utilise les résultats pour spéculer sur les mécanismes réactionnels, et la communauté des mécaniciens qui se focalise sur les conséquences du vieillissement et tente d'en modéliser l'évolution dans le temps. Les ponts entre ces deux communautés sont très rares car ils exigent vraiment un « grand écart culturel ». Les chimistes parviennent à un raffinement extrême dans la description des phénomènes à l'échelle moléculaire, mais les praticiens sont souvent incapables de les traduire en termes de durée de vie. De même, les mécaniciens sont capables de mettre en œuvre des modèles très sophistiqués, mais sans les lier avec les mécanismes élémentaires, si bien que ces modèles conservent un caractère empirique inconciliable avec les exigences de l'extrapolation, étape obligée de la prédiction de durée de vie. Nous sommes actuellement, à notre connaissance, la seule équipe au monde à tenter d'établir un lien entre ces deux communautés.

Le thème général de recherche de l'équipe « Vieillessement des Matériaux Organiques » du laboratoire Procédé et Ingénierie en Mécanique et Matériaux (PIMM), aux ARTS et MÉTIERS ParisTech, est l'étude du comportement à long terme et la fragilisation des polymères et composites à matrice organique dans leurs conditions d'utilisation.

Son axe de recherche de prédilection est l'analyse cinétique des processus d'oxydation (réactions radicalaires en chaînes ramifiées), une attention particulière étant portée au passage de la structure aux propriétés mécaniques et aux critères de fin de vie, généralement structuraux. Il s'agit d'une approche à la fois multi-échelles et multi-physique : couplage réaction-diffusion pour rendre compte de l'inhomogénéité spatiale du vieillissement, couplage mécanique-diffusion, rupture sous contrainte statique en milieu réactif, etc., affichant, comme perspective, la prédiction non-empirique de la durée de vie.

Démarche générale

L'originalité de la démarche de prédiction de durée de vie repose essentiellement sur les points suivants :

- les schémas cinétiques sont résolus par voie numérique et toutes les hypothèses simplificatrices classiques (état stationnaire, longue chaîne cinétique, relation entre les constantes de vitesse de terminaison, etc.) sont supprimées ;
- le couplage réaction-diffusion est incorporé dans les équations différentielles constituant le schéma cinétique ;
- le modèle est utilisé en méthode inverse pour la détermination de constantes de vitesse élémentaires difficilement accessibles par voie directe ;
- le passage de la structure chimique aux propriétés d'utilisation, en particulier mécaniques, est réalisé à partir des relations de la physique et la mécanique des matériaux polymères et composites.

* Note

Maître de Conférences HDR
Responsable de l'équipe « Vieillessement des Matériaux Organiques »

L'objectif, à moyen terme, est d'introduire la diffusion 3D des différentes espèces moléculaires pour pouvoir ensuite, interfacier le modèle cinétique avec des codes commerciaux de calcul de structure.

Exemples d'application

Ce modèle est en cours de construction, mais il a déjà fait preuve d'un réel pouvoir prédictif dans le cadre d'applications industrielles diverses et variées, par exemple :

- le vieillissement thermique de composites à matrice époxyde et bismaléimide pour pièce aéronautique « tiède » (avions subsoniques et supersoniques) ;
- le vieillissement thermique de joncs de composites à matrice époxy pour renfort de ligne électrique aérienne ;
- le vieillissement radiochimique à température ambiante d'isolants de gaines de câbles électriques en polyéthylène ;
- le vieillissement thermique de géotextiles et géomembranes en polyoléfines (polypropylène et polyéthylène) ;
- le vieillissement thermique d'élastomères insaturés (polyisoprène, polybutadiène) pour pièces automobiles et aérospatiales ;
- le vieillissement thermique en présence de désinfectants chlorés de tuyaux de canalisation en polyéthylène pour le transport de l'eau potable ;
- le vieillissement thermique dans les conditions de mise en œuvre ou de recyclage mécanique (à l'état liquide) du polypropylène et du poly(éthylène téréphthalate).

Il s'agit donc déjà d'un outil de simulation performant et relativement sophistiqué.

Vers un couplage entre vieillissement mécanique et vieillissement chimique

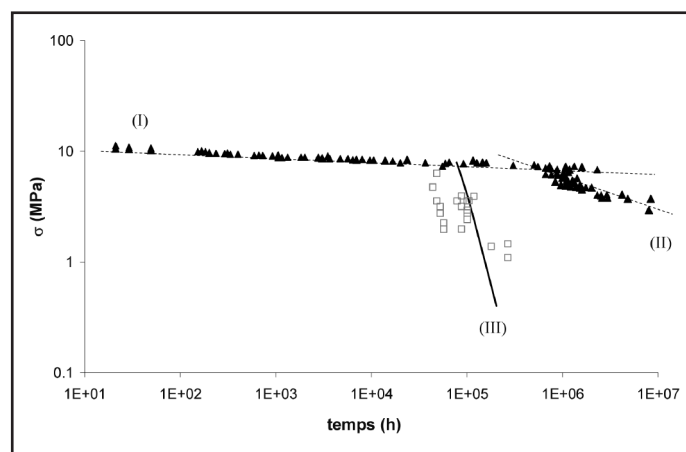
Cette démarche a été appliquée avec succès pour prédire la rupture sous l'effet couplé d'un chargement mécanique et d'une dégradation chimique. Cette étude, financée par GDF-Suez, ANJOU Recherche et SAUR, a porté sur des tuyaux en polyéthylène transportant de l'eau potable sous pression en présence de dioxyde de chlore (désinfectant).

L'expérimentation, sur divers systèmes modèles, a permis d'abord de construire un modèle cinétique dont la principale fonction est de prédire le profil de masse moléculaire dans l'épaisseur du tuyau. Certaines fonctions secondaires du modèle ont permis de prédire des caractéristiques (profils de la concentration en carbonyles, concentration résiduelle en stabilisant, quantité de chlore greffé) qui n'avaient aucune utilité directe, mais qui ont permis de valider le modèle. Pour parvenir à ce résultat, il a fallu bâtir un mécanisme comportant : l'attaque du polymère et l'effet de l'antioxydant par le DOC, l'oxydation du polymère et l'effet de l'antioxydant sur ce dernier. Il a fallu, par ailleurs, incorporer au modèle la diffusion des trois espèces moléculaires : DOC, oxygène et stabilisant.

Ce modèle a permis de prédire la fragilisation du polymère, mais pas la rupture des tuyaux. Pour prédire cette dernière, à partir de la contrainte circonférentielle induite par la pression d'eau, il a fallu établir une loi de fluage dont les paramètres ont été déterminés à partir des courbes de régression obtenues dans l'eau sans désinfectants. Il a fallu également établir un critère de rupture structural, fonction de la masse moléculaire.

Le modèle prévoit que la rupture des tuyaux advient lorsque la déformation (qui dépend du temps, de la température et de la contrainte) devient égale à une valeur critique (qui dépend de la température et de la masse molaire, laquelle est liée à l'agressivité chimique de l'eau désinfectée). Un exemple de simulation est rapporté sur la figure 1. Ce modèle a fait l'objet de deux publications récentes dans la revue *Polymer Engineering and Science* (X. Colin et al., *Polym. Eng. Sci.* 49 (2009) 1429-1437 ; 1642-1652).

▼ Figure 1 : Simulation du régime de rupture fragile « chimique » (III) (traits continus). Comparaison avec les durées de vie de tuyaux vieillis naturellement à la température moyenne de 15 °C dans le sud de la France (□). La courbe de régression obtenue dans l'eau pure à 15 °C (pointillés) est composée d'un régime de rupture ductile (I) et d'un régime de rupture fragile « physique » (II).



Équipe « Vieillissement des Matériaux Organiques »

L'équipe « Vieillissement des Matériaux Organiques » du laboratoire Procédé et Ingénierie en Mécanique et Matériaux (PIMM), aux ARTS et MÉTIERS ParisTech est composée de quatre enseignants-chercheurs : Emmanuel Richaud (analyse des mécanismes), Ludmila Audouin (effets des antioxydants), Bruno Fayolle (fragilisation) et Xavier Colin (modélisation cinétique), et bénéficie des conseils de Jacques Verdu (professeur émérite).

Son axe de recherche de prédilection est l'analyse cinétique des processus d'oxydation (réactions radicalaires en chaînes ramifiées), une attention particulière étant portée au passage de la structure aux propriétés mécaniques et aux critères de fin de vie, généralement structuraux.

Cet axe est soutenu financièrement par les plus grands groupes industriels et organismes de recherche français dont les activités se situent dans des secteurs très exigeants sur le plan de la durabilité, par exemple : AIRBUS, EADS, SNECMA, ONERA, EDF, GDF-Suez, ANJOU Recherche, LCPC, CSTB, etc. Onze doctorants travaillent actuellement sur les différents sujets de recherche de cet axe.